Université Joseph Fourier Grenoble I

N° ISBN
978-2-84813-123-8

THESE

Pour obtenir le grade de

Docteur de L'Université Joseph Fourier

Spécialité : « Génie Electrique »

Préparée au Laboratoire Capteur Actionneur et Récupération d'Energie (CEA-LETI-LCARE)

Dans le cadre de l'Ecole Doctorale
Electronique, Electrotechnique, Automatique, Traitement du signal

Présentée et soutenue publiquement par

Claire Jean-Mistral

Le 8 Octobre 2008

Titre :

Récupération d'énergie mécanique par polymères électroactifs pour microsystèmes autonomes communicants

Directeur de thèse :
M. Skandar Basrour

Jury

M. Daniel GUYOMAR	Examinateur
M. Bertrand NOGAREDE	Rapporteur
M. François COSTA	Rapporteur
M. Laurent TABOUROT	Examinateur
M. Skandar BASROUR	Directeur de thèse
M. Jean-Jacques CHAILLOUT	Co-encadrant
M. Chris VAN HOOF	Invité

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au CEA (Commissariat à l'Energie Atomique) de Grenoble, au sein du laboratoire Capteur Actionneur et Récupération d'Energie (LCARE), rattaché au service Microsystèmes et Objets Communicants (SMOC) du département Système de l'Information et de la Santé (DSIS) du LETI (Laboratoire d'Electronique, de Technologie et d'Instrumentation). Je tiens à remercier M. Roland BLANPAIN, chef du service, et M. Jean-Michel LEGER, chef du laboratoire, pour m'avoir donné la possibilité de travailler durant ces trois années de thèse sur ce sujet passionnant.

Je tiens également à remercier mon directeur de thèse M. Skandar BASROUR et mon encadrant M. Jean-Jacques CHAILLOUT pour leurs implications durant cette thèse et leurs soutiens permanents. Je remercie tout particulièrement M. Ghislain DESPESSE pour les nombreux échanges scientifiques, les conseils prodigués et pistes envisagées tout au long de ces travaux.

Je remercie chaleureusement M. Laurent TABOUROT, Mme Pascale BALLAND et M. Pierre VACHER du laboratoire SYMME de l'Université de Savoie au sein duquel les essais mécaniques ont été réalisés. Je les remercie pour leurs explications techniques, leurs aides et leurs enthousiasmes.

Je remercie tout aussi chaleureusement M. Alain SYLVESTRE du G2Elab, groupe matériaux diélectriques, pour m'avoir permis de réaliser tous les tests électriques et pour avoir pris le temps de m'expliquer certains phénomènes physiques. Je remercie aussi tous les doctorants de ce laboratoire qui m'ont laissé des créneaux sur un planning surchargé et m'ont donné les petites astuces pour des tests réussis.

Je tiens à remercier particulièrement les membres du jury pour le temps et l'intérêt porté à ces travaux : M. Bertrand NOGAREDE (professeur à l'ENSEEIHT, Toulouse) et M. François COSTA (professeur à l'IUFM, Créteil) pour avoir accepté d'être rapporteur de mes travaux, M. Daniel GUYOMAR (professeur à l'INSA, Lyon) et M. Laurent TABOUROT (professeur à U. de Savoie, Annecy), ainsi que Chris VAN HOOF (IMEC, Belgique) invité.

Je remercie aussi toutes les personnes qui m'ont aidé au cours de ces trois années, en particulier M. Fabien FORMOSA pour les discussions sur les modèles mécaniques, M. Jean-Louis DERLON qui a toujours trouvé le matériel et les outils dont j'avais besoin.

Un grand merci à toute l'équipe des antennistes et électroniciens pour les repas de midi animés et conviviaux.

Enfin et pas des moindres, je remercie mes parents, mon petit frère et mes amis proches pour leur soutien, confiance et intérêt tout au long de ce travail. J'exprime du fond du cœur mon amour et ma reconnaissance envers mon compagnon Khalil à qui j'ai fait voir les montagnes russes au cours de cette thèse. MERCI!

Résumé :

Le but de ce travail de thèse est d'explorer la potentialité des polymères électroactifs pour une application de récupération d'énergie mécanique ambiante.

Les polymères électroactifs incluent la famille électronique (piézoélectrique, diélectrique…) et la famille ionique (IPMC, ionic gels…). Grâce à un état de l'art complet, six types de polymères ont été sélectionnés, modélisés analytiquement (couplage électromécanique) et caractérisés. De cette première partie comparative ressortent les polymères diélectriques à la forte densité d'énergie récupérable ($1.5J.g^{-1}$).

La seconde partie de ce travail de thèse concerne la mise en place d'un modèle analytique électro-mécano-thermique le plus fiable possible et adaptable à tous types de structures et de sollicitations. Pour ce faire, une large campagne de mesures électriques et mécaniques a été opérée afin de déterminer finement le comportement physique du matériau, les variations des paramètres intrinsèques et les pertes associées. Ce modèle analytique est validé par une série de tests sur des cas simples de structures.

La dernière partie de ce travail de thèse concerne le développement d'une application novatrice : la récupération d'énergie mécanique au niveau du genou lors de la marche humaine. Le convertisseur a été dimensionné grâce au modèle développé, puis testé in situ. Finalement, des pistes pour la gestion électrique autonome de l'application sont proposées.

Mots-clés :

Polymères électroactifs, Polymères diélectriques, Récupération d'énergie mécanique, Conversion électromécanique, Caractérisation électrique et mécanique, Vêtements intelligents

Abstract:

Electroactive polymers are studied and compared to create an innovating mechanical scavenging application.

Electroactives polymers include electronic (piezoelectric, dielectric…) and ionic (IPMC, gels…) polymers. Thanks to a complete state of art, six polymers have been chosen, characterised and analytically modelled. This comparative study reveals dielectric polymers which have a very important energy density ($1.5J.g^{-1}$).

Then, a detailed electromechanical analytic modelling for dielectric polymer has been realized. This modelling is based on an electric and mechanical characterization of the polymer, and takes care of the parameters variation. Adaptable to any structure and solicitation, this modelling is validated by first simple measurements.

Finally, an innovating application is developed: scavenging mechanical energy during human motion in the level of knee. A prototype has been designed thanks to the analytical modelling, and tested in situ. Ways to create power management is opened.

Keywords:

Electroactive polymers, Dielectric polymers, Mechanical scavenging energy, Electromechanical generator, Electric and mechanical characterization, E-textile

Table des matières :

GLOSSAIRE : - 11 -

INTRODUCTION GENERALE - 13 -

IG.1 CONTEXTE - 13 -
IG.2 NOS OBJECTIFS - 13 -

CHAPITRE 1 : ETAT DE L'ART ET MODELISATION DES POLYMERES ELECTROACTIFS - 15 -

1.1 DEFINITION - 16 -
1.2 CLASSIFICATION - 16 -
1.2.1 La famille électronique - 16 -
1.2.2 La famille ionique - 16 -
1.3 PRINCIPALES CARACTERISTIQUES DES DEUX FAMILLES - 18 -
1.4 PROPRIETES EN MODE ACTIONNEUR - 20 -
1.5 PROPRIETES EN MODE GENERATEUR - 22 -
1.5.1 Les matériaux piézoélectriques - 23 -
1.5.1.1 Définition - 23 -
1.5.1.2 Mode générateur - 23 -
1.5.1.3 Principaux matériaux et caractéristiques - 25 -
1.5.1.4. Dispositifs existants - 26 -
1.5.2 Matériaux électrostrictifs - 26 -
1.5.2.1Définition - 26 -
1.5.2.2 Mode générateur - 27 -
1.5.2.3. Principaux matériaux et caractéristiques - 29 -
1.5.2.4. Densité d'énergie récupérable - 30 -
1.5.3 Les polymères diélectriques - 32 -
1.5.3.1. Définition - 32 -
1.5.3.2. Mode générateur - 33 -
1.5.3.3. Dispositifs existants - 34 -
1.5.4 Les papiers électroactifs - 34 -
1.5.4.1. Définition - 34 -
1.5.4.2. Propriétés du matériau - 34 -
1.5.5 Les polymères ioniques type IPMC - 35 -
1.5.5.1. Définition - 35 -
1.5.5.2. Mode générateur - 36 -
1.5.5.3. Choix du matériau - 36 -
1.5.5.4. Densité d'énergie récupérable - 37 -
1.5.5.5. Dispositifs existants - 39 -
1.5.6 Les polymères conducteurs ioniques - 40 -
1.5.6.1. Définition - 40 -
1.5.6.2. Mode générateur - 40 -
1.5.6.3. Dispositifs existants - 41 -
1.5.7 Conclusion - 41 -
1.6 CONCLUSIONS - 43 -

CHAPITRE 2 : LES POLYMERES DIELECTRIQUES – CARACTERISATIONS - 45 -

2.1 MODE DE FONCTIONNEMENT - 46 -
2.1.1 Mode actionneur - 46 -
2.1.2 Mode générateur - 47 -
2.1.3 Zone actionneur et générateur - 48 -
2.2 THEORIE DE LA RECUPERATION D'ENERGIE - 49 -
2.2.1 Energie récupérable - 49 -
2.2.2 Modèle analytique à développer - 49 -
2.3 CHOIX DES MATERIAUX - 51 -
2.3.1 Choix du polymère diélectrique - 51 -
2.3.2 Choix des électrodes - 52 -
2.4 CARACTERISATION MECANIQUE DU POLYMERE 3M VBH 4910 - 54 -
2.4.1 Modèle analytique - 54 -
2.4.1.1 Description du comportement du polymère - 54 -
2.4.1.2 Hyperélasticité et viscoélasticité - 55 -
2.4.1.3 Essais mécaniques et loi de comportement - 57 -
2.4.2 Protocole de mesure et matériels - 58 -
2.4.2.1 Traction uniaxiale par vidéo-extensomètre - 58 -

2.4.2.2 Test en relaxation - 59 -
2.4.2.3 Test en température - 59 -
2.4.3 Résultats et discussions - 59 -
2.4.3.1 Essai en traction uniaxiale pour le polymère 3M VHB 4910 - 59 -
2.4.3.2 Essai en traction uniaxiale pour le polymère 3M VHB 4905 - 60 -
2.4.3.3 Essais de relaxation - 61 -
2.4.3.4 Effet de la température sur les propriétés mécaniques du polymère - 62 -
2.4.3.5 Effet de la précontrainte sur le comportement du polymère - 64 -
2.4.3.6 L'hystérésis - 65 -
2.4.3.7 La plasticité - 65 -
2.5.4 Conclusion des essais mécaniques - 66 -
2.5 CARACTERISATION ELECTRIQUE DU POLYMERE 3M VHB 4910 - 66 -
2.5.1 Schéma électrique équivalent du polymère diélectrique - 66 -
2.5.2 Protocole de mesure et matériels - 67 -
2.5.3 Résultats et discussion sur le comportement du polymère - 67 -
2.5.2.1 Détermination des relaxations au sein du polymère - 69 -
2.5.2.2 Détermination des lois analytiques - 70 -
2.5.2.3 Détermination de la conductivité directe - 73 -
2.5.3.4 Conclusion - 73 -
2.5.3 Résultats et discussions pour l'application finale - 73 -
2.5.3.1 Effet du type d'électrode sur les constantes électriques - 73 -
2.5.3.2 Effet de la température sur les constantes électriques - 74 -
2.5.3.3 Influence de la précontrainte - 78 -
2.5.3.4 Effet de la précontrainte combinée à la température - 80 -
2.5.3.5 Résistance de surface - 82 -
2.5.3.6 Champ électrique de claquage - 83 -
2.5.4. Conclusion sur la caractérisation électrique - 83 -
2.6 CONCLUSION SUR LE CHOIX DES MATERIAUX - 84 -

CHAPITRE 3 : LES POLYMERES DIELECTRIQUES – MODELISATION ANALYTIQUE - 85 -

3.1 DEFINITION ET DOMAINE DE VALIDITE DU MODELE ANALYTIQUE - 86 -
3.1.1 Introduction - 86 -
3.1.2 Modèle analytique mécano-électrique - 87 -
3.1.2.1. Phase de pré-déformation et relaxation - 89 -
3.1.2.2 Phase d'actionnement - 90 -
3.1.2.3 Phase active - 91 -
3.1.2.4 Rendement de conversion - 94 -
3.1.3 Modélisation thermique - 95 -
3.1.4 Domaine de fonctionnement - 96 -
3.1.4.1. Domaine de fonctionnement en mode actionneur - 96 -
3.1.4.2 Domaine de fonctionnement en mode générateur - 98 -
3.1.5 Résolution analytique : mode d'emploi - 101 -
3.2 QUELQUES RESULTATS THEORIQUES ET COURBES CARACTERISTIQUES - 101 -
3.2.1 Comparaison des cycles générateurs pour une déformation maximale - 102 -
3.2.1.1 Cycle en quasi-statique - 102 -
3.2.1.2 Estimation du rendement de l'étage de conversion - 104 -
3.2.1.3 Fonctionnement en fréquence - 105 -
3.2.2 Comparaison des cycles générateurs pour une déformation non maximale - 106 -
3.2.3 Comparaison des cycles générateurs pour des épaisseurs différentes - 107 -
3.2.4 Fonctionnement en régime forcé - 108 -
3.3 RESULTATS EXPERIMENTAUX - 109 -
3.3.1 Réalisation du prototype - 109 -
3.3.2 Caractérisation du prototype - 110 -
3.3.3 Détermination de l'énergie produite par le prototype en quasi statique - 111 -
3.3.4 Fonctionnement en fréquence du prototype - 112 -
3.4 AMELIORATIONS ET PISTES A DEVELOPPER - 113 -
3.4.1 Système d'amorçage - 113 -
3.4.2 Tension de polarisation et système multicouche - 113 -
3.5 CONCLUSION - 114 -

CHAPITRE 4 : APPLICATION AUX MOUVEMENTS DU CORPS HUMAIN - 115 -

4.1 CHOIX DE LA ZONE OPTIMALE - 116 -
4.1.1 Energie dissipée par le corps humain - 116 -
4.1.2 Marche humaine et course - 118 -

4.2 DIMENSIONNEMENT DU GENERATEUR ..... - 118 -
4.2.1 Choix de l'emplacement et de la forme du dispositif ..... *- 118 -*
4.2.2 Etude théorique ..... *- 121 -*
4.2.3 Spécification du prototype ..... *- 122 -*
4.2.3.1 Détermination des principales caractéristiques du prototype ..... - 122 -
4.2.3.2 Zone de fonctionnement du prototype ..... - 124 -
4.3 RESULTATS EXPERIMENTAUX ..... - 124 -
4.3.1 Réalisation du prototype ..... *- 124 -*
4.3.2 Mesures au repos ..... *- 125 -*
4.3.2.1 Caractéristiques du générateur ..... - 125 -
4.3.2.2 Evaluation de la force utile ..... - 125 -
4.3.2.3 Tension de claquage pour le polymère 3M VHB 4905 ..... - 126 -
4.3.3 Mesures lors de cycles générateurs ..... *- 126 -*
4.3.3.1 Circuit électrique de test ..... - 126 -
4.3.3.2 Signaux électriques caractéristiques du prototype ..... - 127 -
4.3.3.3 Détermination des temps caractéristiques ..... - 129 -
4.3.4 Expérience sur un banc de test ..... *- 130 -*
4.3.4.1 Cycle à tension constante ..... - 130 -
4.3.4.2 Cycle à charge constante ..... - 131 -
4.3.5 Expérience sur le genou ..... *- 131 -*
4.3.5.1 Cycle à tension constante ..... - 132 -
4.3.5.2 Cycle à charge constante ..... - 132 -
4.3.6 Rendement de l'application ..... *- 133 -*
4.3.7 Premier test en fatigue ..... *- 134 -*
4.3.8 Conclusion ..... *- 135 -*
4.4 GESTION ELECTRIQUE AUTONOME : PISTE DE REALISATION ..... - 135 -
4.4.1 Réalisation d'un circuit de gestion électrique simple ..... *- 135 -*
4.4.2 Gestion électrique autonome ..... *- 138 -*
4.4.2.1 Principe de fonctionnement ..... - 138 -
4.4.2.2 Etage de puissance ..... - 139 -
4.4.2.3 Etage de commande ..... - 139 -
4.4.2.4 Conclusion sur la gestion électrique autonome ..... - 140 -
4.5 AMELIORATIONS DE LA STRUCTURE EXISTANTE ..... - 140 -
4.5.1 Localisation ..... *- 141 -*
4.5.2 Matériels et forme du dispositif intégré ..... *- 142 -*
4.5 CONCLUSION ..... - 143 -

CONCLUSIONS GENERALES ET PERSPECTIVES DE RECHERCHE ..... - 145 -

CG1. CONCLUSION DES TRAVAUX DE THESE ..... - 145 -
CG2. PERSPECTIVES DE RECHERCHES ..... - 145 -

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES ..... - 147 -

ANNEXE 1 : MODELE VARIATIONNEL POUR MEMBRANE EN IPMC ..... - 155 -

A1.1 MISE EN PLACE DU MODELE ..... - 155 -
A1.2 APPLICATION DU MODELE A UNE MEMBRANE EN IPMC ..... - 157 -
A1.3 CALCUL THEORIQUE DE L'ENERGIE RECUPERABLE ..... - 158 -
A1.4 EXPERIENCES ..... - 158 -
A1.5 CONCLUSION ..... - 160 -

ANNEXE 2 : PROTOCOLE DE MESURE PAR VIDEO-EXTENSOMETRE ..... - 161 -

ANNEXE 3 : PROTOCOLE DE MESURE SPECTROMETRIE DIELECTRIQUE ..... - 165 -

ANNEXE 4 : CHOIX DE LA CONFIGURATION DE TEST POUR L'ELECTRODE GRAISSE ..... - 167 -

ANNEXE 5 : REALISATION DES GENERATEURS DIELECTRIQUES ..... - 168 -

ANNEXE 6 : MARCHE ET COURSE HUMAINE ..... - 171 -

A6.1 DEFINITION DE LA BIOMECANIQUE ..... - 171 -
A6.2 LA MARCHE HUMAINE ..... - 171 -
A6.3 LA COURSE ..... - 174 -
A6.4 CONCLUSION ..... - 175 -

Glossaire :

PZT : Titanate Zirconate de Plomb
PVDF ou PVF2 : Fluorure de Polyvinylidene
P(VDF-TrFE) : Fluorure de Polyvinylidene de trifluoroethylène
P(VDF-TrFE-CTFE) ou P(VDF-TrFE-CFE) : Fluorure de Polyvinylidene de trifluoroéthylène chlorofluoroéthylène
EAP : ElectroActive Polymère ou polymère électroactif
DE : Dielectric Elastomer ou elastomère diélectrique
IPMC : Ionic Polymer-Metal Composite ou polymère composite ionique

Les exposants *S, T, E, D* en majuscules indiquent que ces valeurs sont considérées constantes.

L'exposant *t* indique la transposée de la matrice.

Introduction générale

IG.1 Contexte

Nombreux sont les domaines où la mesure physique via des capteurs est indispensable au fonctionnement de systèmes communicants : la surveillance de sites militaires, les machines industrielles, les relevés de données spatiales… Ainsi, ces dernières années, de plus en plus d'environnement sont instrumentés.

En effet, les capteurs ont gagné en précision, fiabilité, robustesse tout en se miniaturisant. Toutefois, leur essor est à ce jour freiné par la durée de vie limitée de leur système d'alimentation électrique, type pile ou batterie. Cette contrainte met en cause une des caractéristiques les plus recherchées pour les capteurs : l'autonomie. De plus, ces accumulateurs (pile, batterie…) sont d'un coût important et sont polluants pour l'environnement.

Ainsi, récupérer l'énergie ambiante est une alternative prometteuse afin d'assurer l'autonomie énergétique d'appareils nomades. Toutefois, à chaque environnement peut correspondre une ou plusieurs sources d'énergie telles la lumière, le vent, les gradients thermiques, les vibrations mécaniques, ect…

De nombreux travaux ont été réalisés autour de ces énergies renouvelables. La lumière, présente dans une majorité d'environnements, offre la plus haute densité de puissance pour une source ambiante ($15000\mu W.cm^{-3}$). Elle est suivie par les sources types flux d'air, vibrations mécaniques (autour de $300\mu W.cm^{-3}$), puis gradient thermique ($40\mu W.cm^{-3}$). L'énergie solaire a fait l'objet de bon nombre d'études et son développement est assez avancé, ce qui rend l'innovation technique limitée. L'énergie thermique est moins présente dans l'environnement ambiant. Sa densité de puissance est la plus faible des trois densités énoncée ci-dessus, elle n'est donc pas la mieux adaptée pour fournir la puissance nécessaire à l'alimentation des capteurs. Nos efforts se focalisent sur les sources ambiantes mécaniques. Elles existent sous différentes formes : vibrations, déformations, variations de contraintes. Toutes opèrent à des fréquences inférieures à la centaine de hertz.

IG.2 Nos objectifs

De nos jours, peu de systèmes de conversion travaillent aux fréquences ambiantes, et seulement quelques structures fonctionnent sur un large spectre de fréquence. De plus, on note que les systèmes récupérateurs d'énergie sont pour la plupart des structures rigides utilisant seulement les vibrations comme source mécanique d'entrée.

En conséquence, nous proposons de développer une structure de conversion flexible, ayant un large spectre de fréquence et aussi miniaturisée que possible. Ce générateur devra alimenter un capteur autonome basse consommation (typiquement $100\mu W$).

D'après une étude bibliographique, seuls les polymères électroactifs peuvent répondre à ces critères et seront donc l'objet de nos recherches.

IG.3 Descriptif du mémoire

Le mémoire se divise en trois parties.

Le premier chapitre effectue un état de l'art des polymères électroactifs avec une présentation des différents polymères, de leur principe de fonctionnement et de leurs principales caractéristiques. Des modèles analytiques sont mis en place pour calculer l'énergie électrique récupérable et choisir le polymère au meilleur potentiel pour une application de récupération d'énergie : les polymères diélectriques.

Le second chapitre est consacré à la caractérisation électrique et mécanique du polymère diélectrique choisi pour l'application. Le troisième chapitre présente la modélisation des polymères diélectriques. Le modèle analytique est réalisé à partir des caractérisations mécaniques et électriques mise en place. Ce modèle est validé par des résultats expérimentaux.

Le quatrième chapitre, qui conclura ce travail de thèse, concernera une application novatrice : la récupération d'énergie du mouvement du corps humain au niveau d'une genouillère. La gestion électrique sera abordée sur cette application.

Chapitre 1 : Etat de l'art et modélisation des polymères électroactifs

L'objectif de cette étude est de proposer des générateurs performants, basés sur une technologique innovante et alternative aux solutions classiques connues, telles la piézoélectricité, l'électromagnétisme et l'électrostatique. En effet, le critère majeur de cette étude est le caractère flexible du prototype. Ainsi, des structures rigides fabriquées à base de métaux sont à écarter comme les structures électrostatiques **[DES 2005]** ou encore celles à base de céramiques piézoélectriques **[POU 2004]**. De plus, les bobines et les aimants restent des éléments rigides même s'il est possible de les réaliser sur des supports de plus en plus flexibles. Ainsi, les polymères électroactifs, matériaux souples possédant des propriétés physiques particulières, sont les meilleurs candidats pour développer un générateur flexible opérationnel aux fréquences ambiantes.

L'utilisation de ces polymères est en pleine expansion mais peu de structures récupératrices d'énergie exploitent leurs potentiels. De nombreuses avancées technologiques sont encore à réaliser : de l'amélioration du matériau à son utilisation en générateur en passant par sa caractérisation fiable et sa modélisation. De plus en plus d'équipes scientifiques se positionnent dans ce domaine des polymères électroactifs mais aucune étude comparative complète en mode générateur n'a été réalisée.

Ainsi, l'objectif de ce premier chapitre est la modélisation et la comparaison des polymères électroactifs en mode générateur. Un tour d'horizon de tous les matériaux électroactifs, de leurs propriétés et de leur principe de fonctionnement nous permet de mettre en place des modèles analytiques. A partir de ces derniers, une comparaison des performances de ces polymères en termes de densité d'énergie récupérable, de domaine de fonctionnement est opérée. Le meilleur candidat sera alors sélectionné et utilisé pour développer un nouveau générateur flexible.

Un état de l'art des structures existantes à base de polymères électroactifs en mode générateur est inclus aux modélisations de ces polymères.

Remarque 1 : De nombreux polymères sont des polymères commerciaux faisant l'objet d'une marque déposée. Pour ne pas alourdir ce manuscrit, le sigle ® de la marque déposée ne sera pas mis à chaque fois mais seulement la première fois que l'on cite ce matériau.

Remarque 2 : Les schémas et figures issues de la bibliographie ne sont pas traduits, et sont donc laissés en anglais.

1.1 Définition

Les polymères électroactifs, ou « muscles artificiels », sont des composés organiques légers, flexibles et capables de répondre à une stimulation électrique par un changement en dimensions, et formes.

Historiquement, les premiers matériaux électroactifs durs ont été découverts en 1880 (Pierre et Jacques Curie) avec la piézoélectricité. Mais, il faut attendre 1949 et Katchalsky pour obtenir des polymères stimulés chimiquement. Et ce n'est que depuis le milieu des années 90 **[ZHAN 1998] [BAR 2001]** que l'on s'intéresse aux polymères stimulés électriquement.

Bar-Cohen **[BAR 2001]** a développé une classification de ces polymères, adoptée depuis par la communauté scientifique et qui sert de base à notre étude. Cette classification est reportée tableau 1.1.

1.2 Classification

La dénomination « polymère électroactif » est très générale et cette classification permet de visualiser les matériaux englobés sous ce terme.
Deux grandes catégories se distinguent selon leur actionnement : la famille électronique et la famille ionique **[BAR 2001]**.

1.2.1 La famille électronique

Appelés « Electronics EAP » en anglais, les polymères de cette famille sont activés par un champ électrique extérieur.

Généralement, une structure à base de polymère électronique est composée du matériau électroactif pris en sandwich entre deux électrodes.
Ces polymères ont des performances attractives au niveau de la conversion électromécanique. Le couplage peut être linéaire (piézoélectricité) ou non linéaire, tel une évolution au carré (électrostriction, force électrostatique type pression de Maxwell).

Ainsi, la famille électronique est composée de sous familles ou classes, chacune se référant à un phénomène particulier d'activation due à des propriétés électriques intrinsèques (tableau 1.1).

1.2.2 La famille ionique

Appelés « Ionic EAP » en anglais, ces polymères se basent sur une diffusion d'ions ou de molécules au sein du matériau.

Les actionneurs utilisant des « ionics polymers » ont généralement la même structure qu'une pile, soit deux électrodes séparées par un électrolyte.

De même que pour la famille électronique, la famille ionique est divisée en sous familles basées chacune sur un principe physique ou chimique particulier (voir tableau 1.1).

	Nom	Principe physique	Exemple de matériau
Famille électronique	**Polymère ferroélectrique**	matériau qui possède, à l'échelle des domaines élémentaires, un moment dipolaire permanent (exemple : piézoélectricité, électrostriction).	• piézoélectrique : PZT, PVDF • électrostriction : P(VDF-TrFE), P(VDF-TrFE-CTFE)
	Electrets	matériau ayant une polarisation électrique non nulle après exposition à un fort champ électrique ou après injection de charges (Corona poling)	• PVDF, Polypropylène (PP) ou PTFE chargé
	Elastomère diélectrique	matériau fonctionnant sur le principe d'une capacité variable : effet électrostatique entre charges.	• acrylate : VHB 4910 de 3M® • silicone : HS3 de Dow Corning®
	Elastomère électrostrictif greffé	matériau ferroélectrique type électrostrictif qui a la particularité d'être composé d'une matrice flexible et d'un polymère greffé sous forme cristalline.	• matrice : copolymère du chlorotrifluoroéthylène ou trifluoroéthylène • grèffe : P(VDF-TrFE)
	Papier électroactif	matériau type papier composé d'une multitude de particules (fibre naturelle) formant un réseau et, combinant des propriétés piézoélectriques à une migration ionique	• cellulose prise en sandwich entre deux électrodes métalliques (or, platine…)
	Elastomère électro-viscoélastique	matériau composé d'un élastomère en silicone et d'une phase polaire. Il se comporte comme un fluide électrorhéologique.	
	Elastomère LCE (liquid cristal elastomer)	matériau qui possède des propriétés piézoélectriques et qui se déforme en réponse à un gradient thermique (Effet Joule pour une activation électrique)	
Famille ionique	**Gel ionique**	matériau qui devient dense (contraction) ou gonflé (étirement) lors du passage d'un environnement acide à un environnement alcalin.	• polyacrylonitryle
	Composite ionique (IPMC)	matériau qui se courbe en réponse à un champ électrique par migration ionique au sein d'une membrane sélective d'ions.	• membrane sélective : Nafion® ou Flemion® • électrode : platine, or
	Polymère conducteur ionique (CP)	matériau sujet à des réactions d'oxydoréduction qui induisent des variations de volume.	• CP : polypyrrole, polyaniline
	Nanotubes de carbone	matériau dont la balance électronique entre le nanotube et l'électrolyte est modifiée par injection de charges, ce qui induit des changements de dimensions.	
	Fluide électrorhéologique	matériau sujet à des migration de particules, qui fait varier les propriétés rhélogiques du fluide comme la viscosité	• LID 3354 de ER Fluid Developments Ltd.

Tableau 1.1 : Classification des polymères électroactifs

1.3 Principales caractéristiques des deux familles

Que ce soient pour les polymères électroniques ou ioniques, des caractéristiques propres peuvent être établies en termes d'avantages et d'inconvénients (tableau 1.2) **[BAR 2001].**

Famille	Avantages	Inconvénients
Famille Electronique	● force générée importante ● temps de réponse court ● fonctionne dans des conditions ambiantes ● durée de vie importante	● champ électrique d'actionnement élevé(de 20 à 150 MV/m) ● sens de la déformation unique pour les couplages quadratiques
Famille Ionique	● déplacements importants ● champ électrique d'alimentation faible (10kV/m) ● sens de la déformation fonction de la polarité de la tension	● temps de réponse lent ● faible force générée ● condition d'utilisation paticulière (milieux humides…) ● couplage électromécanique faible

Tableau 1.2 : Principales caractéristiques des deux familles d'EAP

Au vu de ce tableau, les trois caractéristiques les plus importantes des polymères électroniques sont :

- la haute tension nécessaire à l'actionnement,
- leur rapidité
- leur importante force utile.

Quand aux polymères ioniques, ils requièrent une tension d'alimentation faible et produisent de larges déformations. Mais ils sont plus lents et délicats à utiliser car basés sur une migration ionique.

Il apparaît de cette première comparaison que le domaine d'application de chacune de ces familles est distinct. Il serait donc logique d'utiliser la famille électronique pour une application à haute densité de force, alors que la famille ionique est plus adaptée à une application faible tension.

Il est alors nécessaire de classifier les polymères électroactifs selon des critères précis afin de répondre au mieux aux contraintes imposées par l'application future. Ainsi, la DARPA **[WAX 1999]** propose une classification qui compare les polymères électroactifs avec les muscles naturels (natural muscle), les actionneurs magnétiques (voice-coil), les céramiques piézoélectriques (PZT) et les alliages à mémoires de forme (SMA Shape Memory Alloys), tous en mode actionneur. Les gels mentionnés au sein des figures 1.1 et 1.2 sont des gels ioniques type polyelectrolyte gel.

Cette étude est résumée en deux graphes (figures 1.1 et 1.2). Le premier (figure 1.1) relate les contraintes en fonction de la déformée pour les différentes familles, et inclut aussi la densité d'énergie. Ce graphe nous renseigne sur les domaines d'actionnement des différents polymères. Un polymère diélectrique est pressenti pour une application large déformation, une céramique piézoélectrique pour une application forte contrainte/faible déplacement.

Il peut aussi être utile de classer les polymères électroactifs en fonction de leur densité d'énergie élastique, en mode actionneur. A titre d'exemple, il apparaît que les élastomères diélectriques ont une plus haute densité d'énergie que les autres polymères électroactifs (figure 1.1).

Le second graphe (figure 1.2) trace le travail spécifique par unité de masse en fonction de la fréquence de fonctionnement. Ce graphe nous renseigne sur les fréquences de fonctionnement des différents matériaux. On remarque ainsi que les matériaux piézoélectriques peuvent fonctionner jusqu'à des fréquences de l'ordre de 100kHz alors que les polymères électroactifs fonctionnent à des fréquences beaucoup plus faibles.

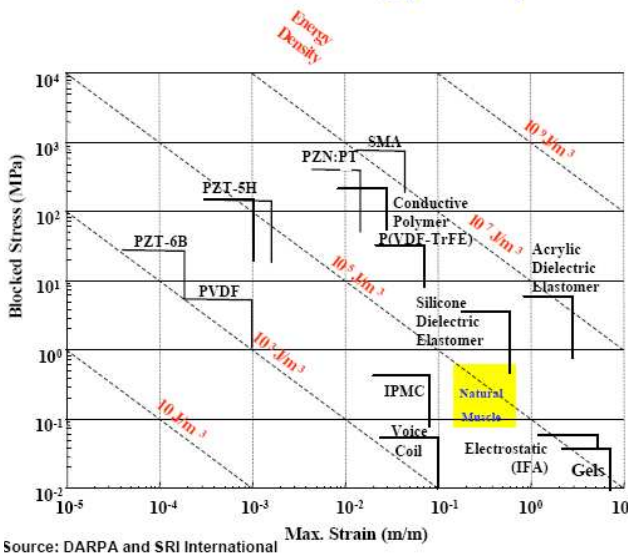


Figure 1.1 : Contrainte-déformation pour différents matériaux électroactifs

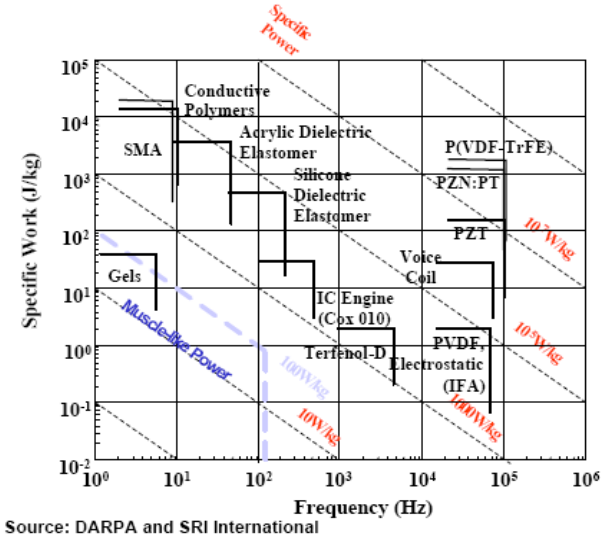


Figure 1.2 : Travail spécifique-fréquence pour différents matériaux électroactifs

Nota bene :

Ce graphe nous renseigne entre autre, sur les densités d'énergie élastique $E_{élastique}$ mises en jeu au sein de chacune de ces familles, décrite par la formule suivante :

$$e_{élastique} = \frac{1}{2} Y S^2$$

avec

Y module de Young

S déformation subie par le matériau.

Nota bene :

Le travail spécifique donné en $J.kg^{-1}$ n'est autre que la densité d'énergie en $J.m^{-3}$ du premier tableau avec prise en compte de la masse volumique du matériau.

Notons que la puissance spécifique en $W.kg^{-1}$ est le travail spécifique ($J.kg^{-1}$) multiplié par la fréquence d'utilisation

Sachant que l'application, que nous proposons de réaliser, a pour but de récupérer un maximum d'énergie mécanique ambiante, nous aurons pour principales contraintes une haute densité d'énergie, et une fréquence de fonctionnement inférieure à 100Hz. En extrapolant qu'une haute densité d'énergie en mode actionneur peut conduire à une haute densité d'énergie en mode générateur, les meilleurs candidats aux faibles fréquences sont dans l'ordre :

- les polymères diélectriques,
- les polymères conducteurs,
- les polymères électrostrictifs,
- les gels ioniques types IPMC,
- les polymères piézoélectriques type PVDF.

Nous étudierons donc les propriétés de ces cinq familles en mode actionneur et en mode générateur. Les matériaux piézoélectriques, les plus utilisés en récupération d'énergie, nous serviront de référence pour les comparaisons.

Remarque : Les papiers électroactifs sont les matériaux les plus récemment développés et non inclus dans l'étude de la DARPA. Ils peuvent présenter une forte innovation technique ***[KIM 2000], [KIM 2002], [KIM 2005]*** *et seront à ce titre aussi inclus dans notre étude.*

1.4 Propriétés en mode actionneur

Nous avons réalisé un état de l'art (tableau 1.3) regroupant toutes les études publiées sur ces six matériaux électroactifs **[BAR 2001] [KOF 2001] [MAD 2001] [SHA 2001] [KIM 2003] [POU 2004] [CAR 2005-a]**.

Les quatre premiers polymères du tableau 1.3 sont des polymères électroniques et les deux derniers des polymères ioniques.

Ce tableau récapitule les principales caractéristiques mécaniques et électriques des différentes classes de polymères. De plus, il détaille les modes possibles d'utilisation, les fréquences de fonctionnement, et dresse les avantages et inconvénients de chaque classe.

Matériaux électroactifs	Déformation maximale (%)	Pression maximale (Mpa)	Module de Young (GPa)	Densité d'énergie spécifique ($J.g^{-1}$)	Densité d'énergie ($J.cm^{-3}$)	Masse volumique ($g.cm^{-3}$)	Utilisation	Fréquence d'utilisation	Avantages	Inconvénients
Piézoélectricité **céramique (PZT)** **polymère (PVDF)**	0.2 0.1	110 4.8	65 3	13.10^{-3} $1,3.10^{-3}$	0.1 $2,4.10^{-3}$	7,8 1,78	• utilisation en dynamique et en quasi-statique • compresssion ou flexion	<100 kHz	• nombreux matériaux développés • force utile élevée • contrôle préçis de la position	• si taille ↓, alors fréquence ↑ • rendement faible • très faible déformation • prix élevé
Electrostriction **P(VDF-TrFE) S1** **S3**	3,5 5	20 35	1 0,3	0,35 0,27	0,67 0,5	1,9	• utilisation en dynamique et en quasi-statique • compresssion ou flexion	<10 kHz	• faible hystérésis donc pertes faibles	• haute tension d'alimentation • prix élevé
Polymère diélectrique **acrylique** **silicone**	380 63	7.2 3.0	2.10^{-3} $<17.10^{-3}$	3.4 0.75	3.4 0.75	1	• utilisation en dynamique et en quasi-statique • compresssion ou flexion	< 100 Hz	• déformation très importante • très flexible, léger • prix faible	• haute tension d'alimentation • faible force utile • difficulté à réaliser des électrodes très déformables
Papier électroactif	300	200	5 à 8	$4,1.10^{-4}$	$3,2.10^{-4}$	0,77	• utilisation en dynamique et en quasi-statique • flexion	< 100 Hz	• sous champ faible, larges déplacements et forces faibles	• peu d'études effectuées : mécanisme et paramètres mal cernés
IPMC	10	3 à 15	0.1 à 1	0,01	0,007	Nafion-Pt 1,5	• utilisation en dynamique et en quasi-statique • compresssion ou flexion	< 100 Hz	• très flexible • large déplacement	• temps de réponse lent • fonctionne mieux en milieu humide
Polymère conducteur ionique	12	34	0.1 à 0.8	23	23	1	• utilisation en dynamique et en quasi-statique • flexion	< 10 Hz	• polymère composite ayant une très haute densité d'énergie	• doit être dopé pour être conducteur

Tableau 1.3 : Caractéristiques principales de six polymères électroactifs en mode actionneur

Au vu du tableau 1.3 et de nos critères, les polymères diélectriques semblent être un bon compromis :

- souple : module d'Young de 2MPa
- haute densité d'énergie : 3.4J.cm^{-3} en mode actionneur
- fonctionnement aux faibles fréquences (<100Hz)

Mais, il est difficile d'affirmer que ce polymère est le candidat idéal car il possède un inconvénient de taille, la haute tension pour son actionnement. Si bien que la mise en place de modèles en mode générateur est nécessaire pour une meilleure comparaison des polymères électroactifs sélectionnés. Ces modèles nous permettront en particulier d'estimer la densité maximale d'énergie électrique récupérable.

Un état de l'art complet a été réalisé pour chacune de ces six familles, puis un modèle analytique a été mis en place à partir du principe de fonctionnement spécifique à chaque famille. Ceci nous a permis d'estimer l'énergie électrique récupérable de chaque famille afin d'en déterminer le meilleur candidat par rapport à ce paramètre.

1.5 Propriétés en mode générateur

Le rendement global d'un dispositif de récupération d'énergie est décrit sur la figure 1.3

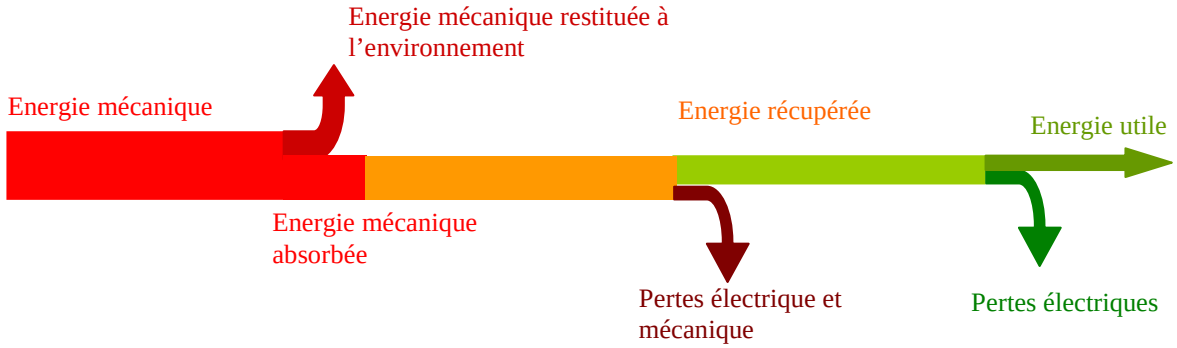


Figure 1.3 : Energies mises en jeu lors du processus de récupération d'énergie

Ce rendement tient compte de l'étage de gestion électrique, et est donné par l'équation 1.

$$\eta_{total} = \eta\eta_{ges} \tag{1}$$

avec

$$\eta = \xi_{abs}\eta_{conv} \tag{1.a}$$

et

$$\xi_{abs} = \frac{e_{abs}}{e_{méca}} \tag{1.b}$$

et

$$\eta_{conv} = \frac{e_{rec}}{e_{abs}} \tag{1.c}$$

et

$$\eta_{ges} = \frac{e_{uti}}{e_{rec}} \tag{1.d}$$

e_{abs} énergie absorbée par le polymère
e_{meca} énergie mécanique apportée au polymère
e_{rec} énergie électrique récupérée
e_{uti} énergie électrique utile

ξ_{abs} coefficient d'absorption mécanique
η_{conv} rendement de conversion électromécanique
η_{ges} rendement de l'étage de gestion électrique

Si on suppose que le rendement de gestion électrique est sensiblement le même pour ces six polymères, la connaissance du rendement de conversion η nous permet de comparer et classifier ces matériaux.

Ainsi, les modèles établis au cours des paragraphes suivants ne tiennent compte que de l'étage de conversion électromécanique.

1.5.1 Les matériaux piézoélectriques

1.5.1.1 Définition

La piézoélectricité est une propriété particulière des matériaux ferroélectriques. Elle s'observe dans tous les corps possédant une anisotropie cristalline, et se manifeste selon deux effets :

- l'effet direct est la polarisation du matériau sous l'action d'une contrainte mécanique
- l'effet inverse est l'apparition d'une déformation mécanique sous l'effet d'une polarisation électrique

Au vu de la définition donnée ci-dessus, ce matériau est dit actif : la conversion de l'énergie mécanique en électricité avec un matériau piézoélectrique est directe. Elle ne nécessite pas de source secondaire de polarisation externe.

1.5.1.2 Mode générateur

Sous un effort de traction, on crée une polarisation ionique (mécanisme très rapide), c'est à dire un axe de polarisation privilégié, par séparation à l'échelle cristalline du barycentre des charges positives et négatives, comme le montre la figure 1.4.

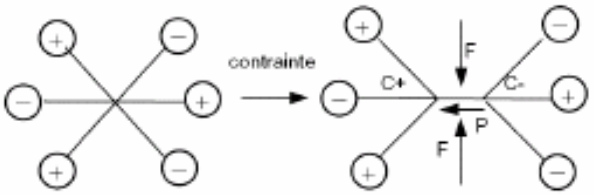


Figure 1.4 : Déplacement du barycentre des charges au niveau de la maille cristalline [GUI 2006]

Ce phénomène est traduit au niveau macroscopique par des équations intrinsèques du matériau piézoélectrique, liant grandeurs électriques et mécaniques. Les couplages électromécaniques entre contrainte *T*, déformée *S*, champ électrique *E* et déplacement électrique *D* sont mis en évidence au travers du potentiel thermodynamique de Gibbs, à partir duquel découlent les équations linéaires de la piézoélectricité. Pour définir un potentiel thermodynamique, il est possible de privilégier un couple de variables (*D* ; *S*), (*D* ; *T*), (*E* ; *S*), (*E* ; *T*). On peut donc écrire quatre couples d'équations intrinsèques en fonction des variables choisies et du potentiel thermodynamique associé.
Notons que les grandeurs *T* et *E* sont intensives, c'est-à-dire contrôlable par une action extérieure, alors que les grandeurs *S* et *D* sont extensives. Ainsi, à partir de l'enthalpie libre électro-élastique G (potentiel thermodynamique), les équations du matériau sont écrites pour le couple de grandeurs (*E*; *T*) pilotables.

$$G = F - S_\lambda T_\lambda - D_i E_i \qquad (2)$$

avec

F énergie libre
$\lambda=1\ldots6$ indice contracté
$i=1\ldots3$ indice des trois axes de coordonnées

On définit les variations d'énergies électrique, élastique et le couplage linéaire. Puis, par intégration, on aboutit à une expression de *G* incluant les trois contributions. On ne garde que les termes de premier ordre correspondant au couplage linéaire de la piézoélectricité (équation 3).

$$G(T_\lambda, E_i) = \underbrace{-\frac{1}{2}\varepsilon_{ik}^{T} E_i E_k}_{\text{électrique}} \underbrace{-\frac{1}{2} s_{\lambda\mu}^{E} T_\lambda T_\mu}_{\text{élastique}} \underbrace{- d_{i\lambda} E_i T_\lambda}_{\text{couplage linéaire}} \tag{3}$$

A partir de ce potentiel, les équations constitutives de la piézoélectricité sont données par l'équation 4.

$$\begin{cases} S_\lambda = -(\dfrac{\partial G}{\partial T_\lambda})_E = s_{\lambda\mu}^{E} T_\mu + d_{i\lambda} E_i \\ D_i = -(\dfrac{\partial G}{\partial E_i})_T = d_{i\lambda} T_\lambda + \varepsilon_{ik}^{T} E_i \end{cases} \tag{4}$$

avec
$\lambda, \mu=1,\ldots,6$ indices contractés
$i,k=1,\ldots,3$ indices électriques correspondant aux trois axes de coordonnées
s^E souplesse à champ électrique constant (matrice de dimension 6x6)
ε^T permittivité à contrainte constante (matrice de dimension 3x3)
d constante de charge (matrice de dimensions 3x6)

A partir des équations constitutives, trois modes de couplage élémentaires se distinguent : mode longitudinal (33), transversal (31) et cisaillement (15) (figure 1.5).

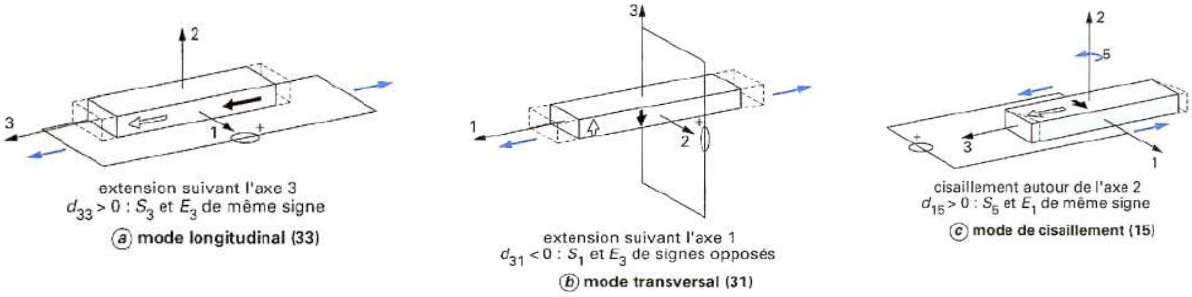


Figure 1.5 : Couplages élémentaires piézoélectriques [NOG 1996]

A chacun de ces modes est associé un coefficient de couplage *k* entre effets mécanique et électrique qui traduit l'efficacité de la conversion électromécanique (équation 5).

$$k_{ij}^2 = \frac{énergie - transformée}{énergie - apportée} \tag{5}$$

Le coefficient de couplage peut être exprimé en fonction des constantes propres au matériau :

- pour le mode longitudinal : $k_{33} = \dfrac{d_{33}}{\sqrt{\varepsilon_{33}^{T}.s_{33}^{E}}}$

- pour le mode transversal : $k_{31} = \frac{d_{31}}{\sqrt{\varepsilon_{33}^{T}.s_{11}^{E}}}$

On peut alors, estimer les coefficients de couplage pour divers modes et différents matériaux. Ce qui permet de réaliser une classification des matériaux en fonction de l'énergie électrique récupérable.

1.5.1.3 Principaux matériaux et caractéristiques

Il existe divers matériaux piézoélectriques **[POU 2004] [GUI 2006]**:

- les monocristaux type quartz, LiNbO3, LiTaO3
- les céramiques massives dont le PZT
- les polymères type PVDF ou copolymère P(VDF-TrFE)
- les piézocomposites type MFC (Macro Fiber Composites) ou AFC (Active Fiber Composite)

Les MFC (développés par la société Smart Material) et les AFC (développés par la société Advanced Cerametrics) sont des matériaux composites composés d'une matrice en résine dans laquelle sont « insérées » des céramiques piézoélectriques type PZT. Le but est d'allier la flexibilité mécanique de la résine (module de Young faible) avec le bon couplage mécano-électrique des céramiques PZT (k élevé).

Les principales propriétés de ces matériaux sont reportées au sein du tableau 1.4.

Notons que T_c est la température de Curie au-delà de laquelle l'effet piézoélectrique disparait.

		Céramique			**Polymère**			**Piézocomposite**	
		PZT-4	**PZT-5**	**PZT-8**	**PVDF (mono-orienté)**	**PVDF (bi-orienté)**	**Copolymère P(VDF-TrFE)**	**MFC**	**AFC**
Densité	**kg.m^{-3}**	7650	7400	7650	1780	1800	1900		2170
Module de Young	**GPa**	60	65	93	3,2	2,5	1,1	30	
d_{33}	**pC.N^{-1}**	335	620	230	-20	-20	-24	400 460	260
d_{31}	**pC.N^{-1}**	-123	-250	-93	20	5	6	-210 à -170	
s_{33}	**10^{-12} m^2.N^{-1}**	14,4	21,9	15,7	89				40
k_{33}		0,67	0,72	0,69	0,16			0,5 à 0,7	
k_{31}		0,32	0,35	0,29	0,11				
Qm		600	65	1600	10	10	10		
T_c		300	200	300	135	75	110	66	
e_rec_max	**mJ.cm^{-3}**	**56**			**0,06**			**30**	

Tableau 1.4 : Principales propriétés des matériaux piézoélectriques

Pour calculer les densités maximales d'énergie électrique récupérable, on utilise la définition du coefficient de couplage *k* (équation 5).

$$e_{élec} = k^2 e_{méca} = k^2 \frac{1}{2} Y S^2 \qquad (6)$$

avec

Y module de Young
S déformée maximale

Ainsi, la densité d'énergie récupérable est de 56mJ.cm^{-3} pour les céramiques PZT, 0.60µJ.cm^{-3} pour les polymères PVDF et de 30mJ.cm^{-3} pour les piézocomposites type MFC.

<u>Conclusion :</u> Au vu de ces calculs, les polymères piézoélectriques susceptibles de récupérer le plus d'énergie sont les piézocomposites type MFC. Cette valeur de densité (30mJ.cm^{-3}) nous servira par la suite de référence pour comparer les polymères électroactifs.

1.5.1.4. Dispositifs existants

Beaucoup de structures récupératrices à base de matériaux piézoélectriques utilisent des céramiques rigides type PZT **[POU 2004]**.

Les dispositifs souples, fonctionnant à faibles fréquences, sont les suivants :

- membrane en PVDF insérée dans le talon d'une chaussure. Ce dispositif est développé par le MIT et permet de récupérer avec une feuille de surface 64 cm², une énergie de 1.3mW sur une résistance de charge de 250kΩ **[KYM 2000]**.
- membrane en PVDF impactée par une goutte de pluie. Ce dispositif développé au CEA permet de récupérer environ 2nJ par goutte de pluie de diamètre 1mm avec au maximum une puissance estimée à 12mW pour des gouttes d'averse. **[GUI 2006].**

1.5.2 Matériaux électrostrictifs

1.5.2.1Définition

L'électrostriction est une propriété de certains matériaux ferroélectriques qui développent une dépendance quadratique entre la déformée *S* et la polarisation *P* sous une contrainte *T* constante.

$$S_{ij} = Q_{ijkl} P_k P_l \tag{7}$$

avec

Q charge électrique sur les électrodes

Or, comme les polymères électrostrictifs ont des propriétés diélectriques linéaires, la polarisation électrique *P* est proportionnelle au champ électrique *E* (équation 8).

$$P = (\varepsilon - \varepsilon_0) E \tag{8}$$

avec

ε permittivité du matériau en F.m^{-1}
ε_0 permittivité du vide (8,85.10^{-12}F.m^{-1})

Ainsi, la déformée est fonction quadratique du champ électrique appliqué (équation 9).

$$S_{ij} = M_{ij} E^2 \tag{9}$$

avec

M_{ij} coefficient d'électrostriction.

Le comportement électrostrictif existe dans les diélectriques (polymères ou céramiques) non symétriques (appelé 1er forme) ou se retrouve au sein de polymères électrostrictifs à changement de phase (appelé 2nd forme). La seconde forme apparaît pour les dérivés du PVDF tel le co-polymère P(VDF-TrFE) ou le terpolymère P(VDF-TrFE-CTFE), polymères semi-cristallin dont les performances sont fonction des changements de phases (ferroélectrique - paraélectrique). En effet, ces

polymères ont plusieurs structures selon la température, la pression et la concentration en VF2 (aussi noté VDF) du polymère.

1.5.2.2 Mode générateur

Contrairement à la piézoélectricité, il n'y a pas d'effet direct, c'est-à-dire qu'une contrainte n'entraîne pas de polarisation du matériau **[LIU 2004] [LIU 2005]**. Ce matériau est dit passif.
Pour convertir de l'énergie mécanique en électricité, le polymère doit subir des cycles énergétiques. En d'autres termes, le polymère « ne doit pas suivre le même chemin » lors de son étirement (chemin A) et lors de sa contraction (chemin B), chemins représentés sur la figure 1.6.

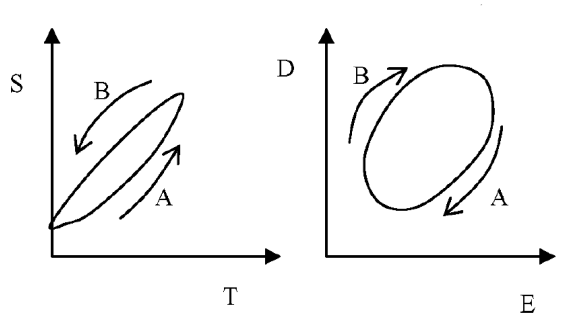


Figure 1.6 : Cycle à réaliser avec un matériau électrostrictif pour la récupération d'énergie [LIU 2004]

L'énergie électrique récupérée est maximale pour une combinaison particulière de conditions aux limites lors de la réalisation de ce cycle (figure 1.5). Ainsi, à partir des équations intrinsèques de l'électrostriction, le calcul des variations mécaniques et électriques sur les chemins A et B est possible, ce qui permet pour des conditions aux limites adéquates de calculer l'énergie électrique récupérée.

Comme pour la piézoélectricité, les équations intrinsèques de l'électrostriction s'obtiennent par dérivation d'un potentiel énergétique préalablement choisi. L'enthalpie libre *G* est choisie comme potentiel thermodynamique, ce qui traduit les couplages entre le champ électrique *E* et le tenseur de contrainte *T*. On développe ensuite en série de Taylor et on ne conserve que les termes du second ordre traduisant le phénomène d'électrostriction. Ainsi, le potentiel de Gibbs s'écrit selon l'équation 10.

$$G = -\frac{1}{2}\underbrace{\varepsilon_{ik}^{T} E_i E_k}_{\text{électrique}} - \frac{1}{2}\underbrace{s_{\lambda\mu}^{E} T_\lambda T_\mu}_{\text{élastique}} - \underbrace{d_{ik\lambda} E_i E_k T_\lambda}_{\text{couplage}} \tag{10}$$

On utilise le principe de conservation de l'énergie pour exprimer les variations d'énergie libre *dG*, à température constante (pas de terme lié à l'entropie).

$$dG = -SdT - DdE \tag{11}$$

Les équations constitutives découlent des dérivées exprimées dans l'équation 12.

$$\begin{cases} S = -(\dfrac{\partial G}{\partial T})_E \\ D = -(\dfrac{\partial G}{\partial E})_T \end{cases} \tag{12}$$

Ainsi, à température constante et sans phénomène d'hystérésis, les équations constitutives de l'électrostriction sont données par les équations 13.

$$\begin{cases} S_{ij} = s^{E}_{ijkl} T_{ij} + M_{mnij} E_n E_m \\ D_m = \varepsilon_{mn} E_n + 2 M_{mnij} E_n T_{ij} \end{cases} \tag{13}$$

avec

s^{E}_{ijkl} souplesse élastique à champ électrique constant

M_{nmij} coefficient d'électrostriction

D_i déplacement électrique

Toutefois, sous un champ électrique fort ($E>E_0$, valeur seuil), la polarisation P sature à une valeur P_s (figure 1.7) A contrainte nulle ($T=0$), la polarisation peut alors être approximée par la loi 14.

$$P = P_s \tanh(\gamma |E|) \tag{14}$$

avec

γ coefficient propre au matériau, variant avec la température

Le potentiel thermodynamique peut alors s'écrire en fonction des variables de contrainte T et de polarisation P (équation 15).

$$G = -\frac{1}{2} s^{P}_{\lambda\mu} T_\lambda T_\mu - Q_{\lambda ik} T_\lambda P_i P_k - \frac{1}{2} \beta^{T}_{ik} P_i P_k \tag{15}$$

Par dérivation, les équations constitutives fonction de la polarisation de saturation sont obtenues.

$$\begin{cases} S_{ij} = s^{D}_{ijkl} T_{kl} + Q_{ijlm} P_l P_m \\ E_i = -2 Q_{klji} T_{kl} P_j + \beta^{T}_{ij} P_j \end{cases} \tag{16}$$

avec

β^{T}_{ij} perméabilité diélectrique

s^{D}_{ijkl} souplesse élastique à déplacement électrique constant

Q_{nmij} charge électrique

La perméabilité diélectrique est constante pour un champ électrique inférieur à E_0 et s'exprime selon l'équation 17.

$$\left[\beta^{T}\right] = \begin{bmatrix} \frac{1}{\gamma|P|} arc\tanh(\frac{P}{P_s}) & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{\gamma|P|} arc\tanh(\frac{|P|}{P_s}) & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\gamma|P|} arc\tanh(\frac{|P|}{P_s}) \end{bmatrix} \tag{17}$$

Finalement, les équations constitutives en fonction de la polarisation de saturation sont données par l'équation 18.

$$\begin{cases} S_{ij} = s^{D}_{ijkl} T_{kl} + Q_{ijlm} P_l P_m \\ E_i = -2Q_{klji} T_{kl} P_j + \frac{1}{\gamma} arc\tanh(\frac{P_j}{P_s}) \end{cases} \quad (18)$$

Les équations constitutives étant établies, on peut calculer les évolutions des variables mécaniques et électriques au cours d'un cycle de récupération d'énergie. Toutefois, il faut choisir préalablement le matériau susceptible d'être le meilleur candidat pour une application de récupération d'énergie.

1.5.2.3. Principaux matériaux et caractéristiques

Les céramiques (PMN, $PbZrO_3$…) sont des matériaux rigides, et à ce titre ne sont pas l'objet de cette étude. On compare les principales propriétés des polymères électrostrictifs qui sont les dérivés du PVDF.

Le polymère P(VDF-TrFE) est un copolymère dérivé du PVDF qu'il faut utiliser près de la transition ferroélectrique – paraélectrique pour obtenir le meilleur couplage électromécanique **[ZHAN 1998] [ZHAO 1998] [TAN 2000] [BHA 2001] [CHE 2001] [GUO 2003] [FRE 2004] [GUO 2004].**
Or, cette transition s'opère à une température supérieure à la température ambiante, et une hystérésis électrique large y est observée (figure 1.6). Pour remédier à ce problème d'hystérésis large, donc de pertes électriques, le P(VDF-TrFE) est soumis à un rayonnement d'électrons d'une énergie de quelque MeV. La dose d'irradiation est généralement autour de 100Mrad Ce dernier détruit les domaines polarisés macroscopiques pour donner des régions paraélectriques, ce qui permet de réduire l'hystérésis (figure 1.7).

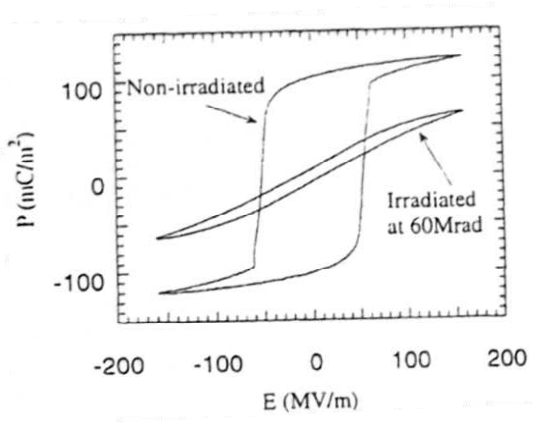


Figure 1.7 : Cycles d'hystérésis pour un polymère irradié et non irradié [CHE 2001]

Le P(VDF-TrFE) irradié possède de meilleures performances électriques que le P(VDF-TrFE) non irradié grâce à une hystérésis réduite. En général, on n'excède pas 70% de VDF, typiquement des mélanges 65/35 (65% de VDF et 35% de TrFE) ou 68/32, afin d'obtenir un matériau électrostrictif performant sous des seuils d'irradiation raisonnable.

Les propriétés du matériau (module de Young, polarisation à saturation…) sont fonction des paramètres choisis lors de l'irradiation :

- la température généralement autour de 100°C
- l'irradiation comprise entre 70 et 100Mrad
- l'énergie utilisée entre 1 et 3MeV

Le terpolymère ($P(VDF_x$-$TrFE_{1-x}$-$CTFE_y$) n'a pas besoin d'être irradié. En effet, l'introduction d'un troisième composant CTFE ou CTE permet de faire du polymère un « relaxor ferroelectric» soit un polymère électrostrictif aux performances améliorées (grandes déformations, faible perte). Toutefois, le procédé de fabrication est délicat **[BAU 2002] [BUC 2002] [XU 2001] [XIA 2004] [YU 2004].**

Le tableau 1.5 récapitule les principales propriétés du copolymère et du terpolymère.

Remarque : La plage d'utilisation en fréquence est typiquement comprise entre 1Hz et 10kHz, limite haute imposée par la polarisation au sein du matériau.

		P(VDF-TrFE)	P(VDF-TrFE) irradié 65/35	P(VDF-TrFE-CTFE) 65/35/10
Déformations maximales	**%**	0,15	5	4
Champ électrique appliqué max	**$MV.m^{-1}$**	/	150	150
Module de Young	**GPa**	4	1	0,4
Contrainte max	**MPa**	6	25	45
Polarisation à saturation	**$mC.m^{-2}$**	/	63	75
γ	**$10^{-8}m.V^{-1}$**	/	1,01	1
Constante diélectrique ε_r	**à 1kHz**	/	30-60	65
Perte diélectrique tan(δ)		/		0,1

Tableau 1.5 : Synthèse des caractéristiques principales des dérivés du PVDF

Pour pouvoir récupérer le plus d'énergie électrique, l'énergie mécanique emmagasiné par le polymère doit être la plus importante possible, et le coefficient d'électrostriction *M* proportionnel à la permittivité relative ε_r du polymère doit être élevé. Selon ces constatations, le terpolymère, susceptible de récupérer plus d'énergie, est choisi.

Nous connaissons le principe de fonctionnement d'un cycle générateur, les équations constitutives, et nous avons déterminé le matériau adéquat. Nous pouvons donc maintenant choisir le meilleur cycle de génération d'électricité en spécifiant les conditions aux limites à imposer. Puis, nous pourrons calculer l'énergie électrique récupérée lors des cycles imposés.

1.5.2.4. Densité d'énergie récupérable

a. Détermination du cycle : choix des conditions aux limites

Pour déterminer les conditions aux limites adéquates, on calcule dans un premier temps l'énergie récupérable grâce à un coefficient de couplage *k* dont la définition est calée sur celle des matériaux piézoélectriques. Ensuite, pour le meilleur cas, on affine le calcul à partir des équations intrinsèques (équation 18) qui modélisent plus finement le comportement du polymère.

En effet, les équations de l'électrostriction peuvent être mises sous une forme similaire de celles de la piézoélectricité. Si bien que l'on peut aussi définir un coefficient de couplage *k*, analogue à celui de l'équation 5.

Si nous notons W_1 l'énergie récupérée, W_2 l'énergie non convertie alors la somme de W_1 et W_2 est l'énergie totale apportée au système (équation 19).

$$k = \sqrt{\frac{W_1}{W_1 + W_2}} \tag{19}$$

Outre une comparaison possible entre différents matériaux, ce coefficient de couplage permet surtout de comparer les différentes conditions aux limites. Plus le coefficient de couplage est élevé, plus on récupère de l'énergie électrique. A partir des travaux de Liu, nous avons étudié différentes conditions aux limites afin de déterminer le « meilleur » facteur de couplage *k* défini selon l'équation 19. **[LIU 2004], [LIU 2005]** Sur la figure 1.8 est représenté le cycle ayant le coefficient de couplage le plus important. C'est un cycle dit à charge constante.

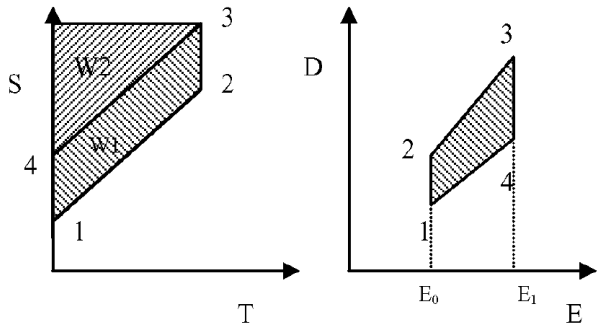


Figure 1.8 : Cycle de récupération d'énergie sous champ électrique constant lors des phases d'étirement et de compression [LIU 2004]

Concrètement, le polymère est au repos en 1 (contrainte *T* nulle, déformée *S* constante). Sous un champ électrique constant E_0, le polymère est étiré mécaniquement : phase 1 à 2. Puis sous cette contrainte maximale, le champ électrique passe d'une valeur E_0 à une valeur E_1 plus importante : phase 2 à 3. Sous ce champ électrique E_1 constant, on supprime la contrainte imposée, le polymère se relaxe et retourne progressivement à un état sans contrainte ($T=0$) : phase 3 à 4. Enfin, le champ électrique revient à la valeur E_0 et le polymère peut retrouver ces dimensions initiales : phase 4 à 1.

Avec le cycle décrit sur la figure 1.8, l'expression du coefficient de couplage *k*, à partir de l'équation 19, est donné par l'équation 20.

$$k = \sqrt{\frac{M(E_1^2 - E_0^2)}{\frac{1}{2}ST_{\max} + M(E_1^2 - E_0^2)}} \tag{20}$$

avec

M coefficient d'électrostriction
T contrainte
S déformée
E_1 et E_0 champs électriques à imposer

Pour optimiser ce coefficient *k*, et donc l'énergie récupérée, on choisit le champ électrique maximal pour le champ électrique E_1 c'est-à-dire le champ de claquage, et le champ électrique nul pour E_0.

Pour le matériau choisi, soit le terpolymère P(VDF-TrFE-CTFE), l'énergie électrique récupérée maximale est de $0.9 J.cm^{-3}$ avec un coefficient de couplage $k=0.802$, sous un champ électrique maximal de $150 MV.m^{-1}$.

Cette densité d'énergie est calculée à partir de deux hypothèses fortes : définition du coefficient de couplage selon l'équation 19, et non prise en compte de la polarisation de saturation. Cette densité d'énergie doit donc être relativisée, et sera prise comme un maximum théorique.

b. Calcul rigoureux de la densité d'énergie

Le cycle générateur assurant la plus grande densité d'énergie est celui décrit sur la figure 1.8. Pour maximiser ce cycle, on choisit toujours pour valeur de E_0 le champ nul et de E_1 le champ de claquage. Une portion du cycle générateur s'effectuera donc sous haut champ électrique, le phénomène de polarisation de saturation est donc à prendre en compte.
Pour cela, on utilise le second couple d'équation (équation 18) et, sur chaque portion (1 à 2, 2 à 3, 3 à 4, 4 à 1), on exprime les variations de contrainte *T*, de déformée *S*, de champ électrique *E* et de polarisation *P*.
Puis, on calcule l'énergie électrique récupérée soit l'aire hachurée sur la figure 1.8 droite, ce qui correspond avec ce nouveau couple d'équation à l'intégrale du produit *EdP*.
Pour le matériau choisi, soit le terpolymère, la densité d'énergie calculée avec cette méthode vaut $0.3 J.cm^{-3}$.

Conclusion : Notre calcul montre que la nouvelle densité d'énergie électrique récupérable ($0.3 J.cm^{-3}$) sous un champ électrique maximal est trois fois plus faible que celle estimée à partir de la littérature. Notre nouvelle estimation est plus précise parce qu'elle prend en compte un phénomène physique supplémentaire (polarisation de saturation), mais surtout parce qu'elle utilise un calcul de trajectoire et d'aire, et non pas une approximation via un coefficient de couplage.

De plus, cette valeur souligne que les polymères électrostrictifs, type terpolymère, récupèrent environ 10 fois plus d'énergie que les matériaux piézoélectriques.
Par contre, ils nécessitent la réalisation de cycles avec une tension de polarisation.

1.5.3 Les polymères diélectriques

1.5.3.1. Définition

Les polymères diélectriques fonctionnent sur le principe d'une capacité variable. Lorsque l'on applique une tension, une pression électrostatique σ_m, appelée pression de Maxwell, apparaît aux bornes des électrodes. Cette pression électrostatique induit une pression mécanique sur les électrodes supérieure et inférieure. Si bien que le polymère se contracte selon son épaisseur (x_3) et s'étend selon son aire (x_1, x_2) (voir figure 1.9).

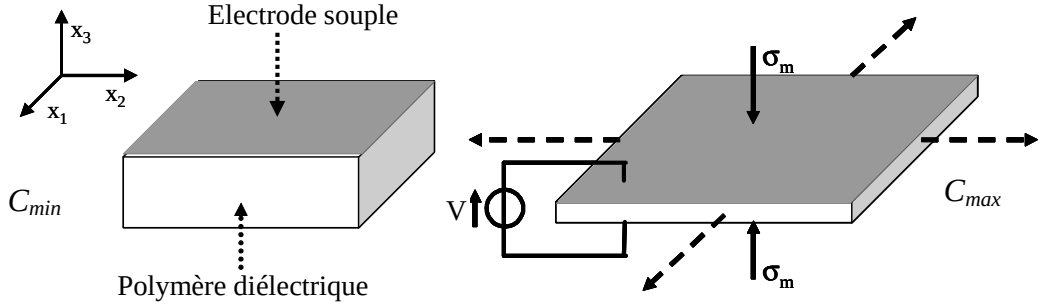


Figure 1.9 : Principe de fonctionnement en mode actionneur d'un polymère diélectrique

Une capacité variable en polymère diélectrique souple opère des changements de dimensions selon les trois directions (plan et épaisseur). Ces variations de dimensions induisent des variations de capacité (C_{max} et C_{min}) qui peuvent être plus importantes que celles générées par une capacité variable « classique », mettant en oeuvre des variations selon une seule direction (généralement l'épaisseur).

1.5.3.2. Mode générateur

Si on applique une tension électrique à un élastomère étiré, des charges électriques sont déposées au niveau des électrodes. Lorsque l'on relâche la contrainte mécanique, la contraction qui en découle (pression mécanique) travaille contre la pression électrostatique et génère ainsi de l'énergie électrique **[PEL 2001]**.

L'énergie électrique générée correspond à l'énergie créée durant la phase de compression, diminué des pertes et l'énergie nécessaire à l'étirement du film.

$$e_{générée} = e_{compression} - e_{pertes} - e_{etirement} \tag{21}$$

Si on néglige les pertes dans la pré-étude, l'énergie générée peut s'écrire sous la forme donnée par l'équation 22.

$$e_{générée} = \frac{1}{2} v_{volume} \varepsilon_0 \varepsilon_r (E^2_{compression} - E^2_{étirement}) \tag{22}$$

avec

ε_r permittivité relative du polymère
ε_0 permittivité du vide soit 8.85 10^{-12} F.m^{-1}
v_{volume} volume du polymère
E champ électrique en MV.m^{-1}

Les calculs, reportés au sein du tableau 1.6 **[PEL 2001]**, sont effectués sous le champ électrique de claquage (pour $E_{compression}$), en négligeant les pertes et l'énergie nécessaires à l'étirement.

	Unité	Silicone	Acrylique
Permittivité relative @1kHz		3	4,8
Permittivité du vide	pF.m^{-1}	8,85	8,85
Champ électrique maximal	MV.m^{-1}	350	440
Densité d'énergie théorique maximale récupérable	J.g^{-1}	1,63	4,11
Champ électrique typique	MV.m^{-1}	150	150
Densité d'énergie théorique typique récupérable	J.g^{-1}	0,30	0,48
Densité d'énergie expérimentalement récupéréé	J.g^{-1}	0,013	0,4

Tableau 1.6 : Densités d'énergie électrique récupérable pour les polymères diélectriques

<u>Conclusion :</u> Les polymères diélectriques possèdent une densité d'énergie récupérable élevée et fonctionne à faible fréquence. Cette densité est dix fois supérieure à celles obtenues avec les polymères électrostrictifs. Mais, comme pour les polymères électrostrictifs, ce générateur requière une source annexe pour charger le polymère.

<u>Remarque :</u> Un modèle plus complet et plus détaillé est mis en place au chapitre 2. Nous nous limiterons volontairement ici à cette étude simple.

1.5.3.3. Dispositifs existants

Le laboratoire américain Stanford Research Institute (SRI International), a créé un générateur utilisant des polymères diélectriques insérés dans le talon d'une chaussure **[PEL 2001]**.

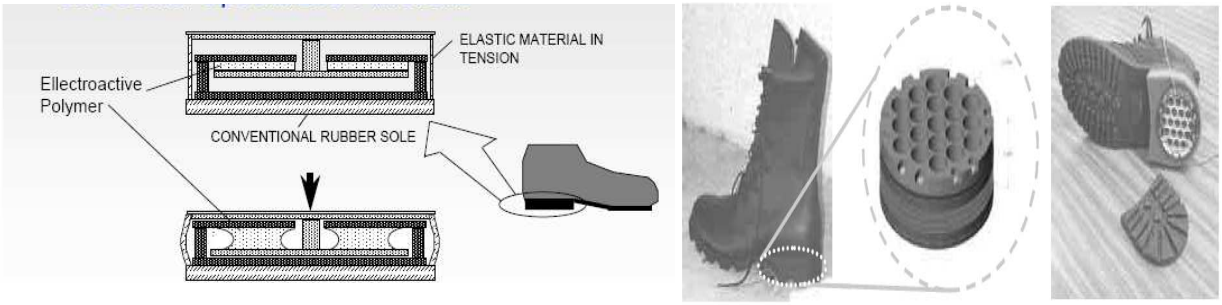


Figure 1.10 : Générateur à base de polymère diélectrique inséré dans le talon d'une chaussure

La force d'impact, générée par le pied au niveau du talon de la chaussure, étire l'élastomère via un système mécanique. En position étirée, des charges sont injectées. Puis, lorsque le pied se soulève, l'élastomère retrouve sa position d'origine et génère de l'énergie électrique par variation de capacité. La seule donnée expérimentale sur ce générateur est la densité d'énergie électrique récupérée, qui vaut 0.4 $J.g^{-1}$. Les dimensions, forces, tension et courant ne sont pas mentionnés. Depuis, aucune autre publication n'est parue sur cette chaussure diélectrique.

Actuellement, l'équipe du professeur Pelrine travaille sur un générateur forte puissance (5W actuellement, en espérant atteindre 1kW en moyenne) qui utilise comme source mécanique d'entrée les mouvements de la houle en mer. Seul l'ordre de grandeur des puissances a été communiqué à ce jour **[CHI 2008]**.

1.5.4 Les papiers électroactifs

1.5.4.1. Définition

Un papier électroactif est un papier en cellulose c'est-à-dire une feuille composée de multitude de particules discrètes et de fibres naturelles qui forment une structure en réseau. Cette feuille est prise en sandwich entre deux électrodes fines (argent…) déposées par vaporisation, métallisation ou autre procédé classique.

Lorsque l'on applique une tension électrique aux bornes de ce sandwich, la feuille se courbe opérant ainsi un déplacement mécanique. Le principe d'actionnement est une combinaison de l'effet piézoélectrique, d'une migration ionique et d'une permittivité diélectrique spatiale non-uniforme due à l'absorption d'eau.

Ces matériaux sont la famille la plus récente des polymères électroactifs et sont étudiés depuis l'an 2000. Afin de mieux comprendre leur fonctionnement, la communauté scientifique s'emploie à les caractériser du point de vue électrique, mécanique et du couplage électromécanique. Ainsi, une seule tentative de modèle analytique est à recenser **[KIM 2000] [KIM 2002] [KIM 2005]**.

1.5.4.2. Propriétés du matériau

Les papiers électroactifs sont des matériaux anisotropes qui développent de large déformation (jusqu'à 300%) et de faibles forces (1,1mN) sous de faibles champs électriques (0,25 $V.\mu m^{-1}$). Ils sont très légers (0,77$kg.m^{-3}$), assez flexibles (module de Young de 5-8GPa) et biodégradables. Du point de vue

des propriétés électriques, la permittivité relative possède une valeur intéressante comprise entre 25 et 40. Leur consommation électrique est faible autour de 10mW.cm^{-2} ainsi que leur efficacité qui varie de 0,05 à 3% en mode actionneur.

Leur densité d'énergie élastique en mode actionneur est très faible 0, 41J.kg^{-1}, soit plus faible que tous les autres polymères figurant dans l'étude de la DARPA (figure 1.1 et 1.2).

Au vu de ces données éparses et sans matières premières à caractériser, mettre en place un modèle analytique est impossible. Toutefois, si l'on suppose que l'efficacité en mode actionneur est sensiblement la même qu'en mode générateur (0,05- 3%) et en prenant comme densité mécanique d'entrée la densité élastique en mode actionneur, nous pouvons espérer une densité d'énergie électrique entre 0,2µJ.kg^{-1} et 10µJ.kg^{-1}, soit plus faible que les piézocomposites qui sont notre référence.

<u>Conclusion :</u> La densité d'énergie récupérable pour ce type de matériau est très faible, voisine de 10µJ.kg^{-1}. Toutefois, ces matériaux sont intéressants de par l'innovation technologique qu'ils peuvent apporter, le challenge de la modélisation et de l'amélioration des propriétés de ces papiers électroactifs.

1.5.5 Les polymères ioniques type IPMC

1.5.5.1. Définition

Un IPMC est composé d'une membrane échangeuse d'ions (anion ou cation) sur laquelle a été déposé un métal pour former des électrodes **[SHA 2001] [KIM 2003] [SHA 2003] [KON 2004] [SHA 2003], [SHA 2004-a] [SHA 2005]**. Généralement, on utilise une membrane échangeuse d'ion type Nafion (anion fixe et cation mobile) sur laquelle on dépose une électrode graduelle en platine ou en or. Le processus chimique de fixation conduit à un gradient de concentration selon l'épaisseur, d'ou l'appellation électrodes graduelles pour l'actionneur obtenu. La figure 1.11 et 1.12 explicite les mouvements au sein du polymère.

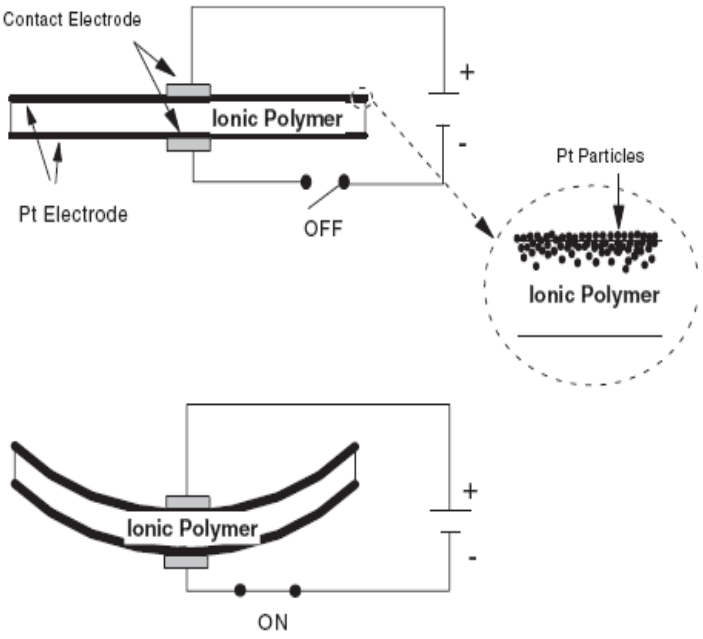


Figure 1.11: Principe de fonctionnement en mode actionneur d'un polymère IPMC [SHA 2001]

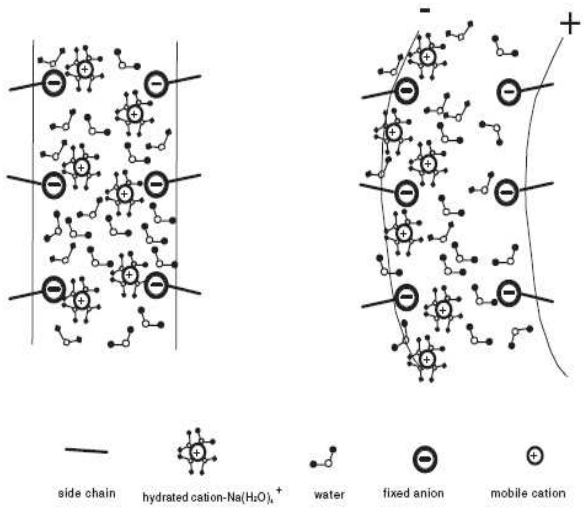


Figure 1.12 : Mouvement des ions au sein d'un polymère IPMC [SHA 2001]

Il existe deux types de modèles expliquant le mécanisme d'actionnement propre au IPMC :

- **un modèle électrostatique** : l'application d'un champ électrique crée des forces électrostatiques d'attraction et de répulsion. La redistribution des cations génère une densité de charge non homogène ce qui produit une force interne sur la chaîne carbonée du polymère. Cette dernière se relâche dans les zones riches en anions et se tend dans les zones riches en cations, ce qui crée la courbure du matériau.
- **un modèle hydraulique : l**'application d'un champ électrique crée une migration des cations qui entraînent avec eux des molécules d'eau. Ces dernières engendrent des pressions sur la membrane du polymère ce qui le fait se courber.

Le modèle le plus réaliste est un modèle mixant les deux approches décrites ci-dessus : c'est le modèle de Yamagami-Tadokoro qui considère, d'une part, les variations de volume liées à la présence d'eau et, d'autre part, les forces électrostatiques générées par une migration ionique au sein de la membrane.

1.5.5.2. Mode générateur

L'effet inverse est appelé « flexogelectric effect » : une flexion, compression ou une charge sur un IPMC produit une tension électrique de sortie **[SHA 1995] [FER 1999] [GEN 2000] [SHA 2002]** :

- en régime quasi-statique : Il existe une relation linéaire entre la tension de sortie et le déplacement imposé au polymère.
- en régime dynamique : Outre les impacts qui génèrent des oscillations libres et amorties au sein du polymère, une sollicitation mécanique sinusoïdale engendre une tension de sortie sinusoïdale de même fréquence.

Les polymères ioniques type IPMC sont actifs comme les piézoélectriques. Ainsi, on peut déterminer des équations constitutives du matériau liant les grandeurs électriques de sortie en fonction des grandeurs mécaniques d'entrée.

1.5.5.3. Choix du matériau

D'un point de vue structurel, on distingue deux catégories d'actionneur à base d'IPMC **[BAR 2001]**:

- ceux avec des cations de petites tailles (Li+…) caractérisés par :
  - une réponse à une sollicitation électrique rapide

  - o l'existence d'une relaxation : Il existe une pression importante à la cathode qui fait fuir l'eau vers l'anode à travers les canaux du polymère.
- ceux avec des cations de grosses tailles (alkyl ammonium ions) qui présentent :
  - o une réponse à une sollicitation électrique lente
  - o pas de relaxation : Les ions, de par leur taille, « bloquent » les canaux et empêchent la fuite de l'eau.

Ainsi, on peut améliorer les performances développées par un IPMC en choisissant correctement les cations qui le composent : la force développée par une structure à base d'ion Li+ est supérieure à la force développée par une structure à base d'ion Na+ ou H+.

Remarque : Dans un environnement sec, les IPMC fonctionnent si la couche de métal (électrode) est assez profonde ou si on l'entoure d'un enduit imperméable flexible.

Nous n'avons pas les moyens de réaliser en interne un polymère ionique, si bien que nous choisissons un polymère du commerce : membrane sélective en Nafion avec des électrode graduelle en platine. Ce type de polymère ionique a été caractérisé maintes fois et on peut trouver dans la littérature les propriétés du matériau déterminées expérimentalement (figure 1.13). **[BUE 2005-a], [BUE 2005-b], [BUE 2006]**

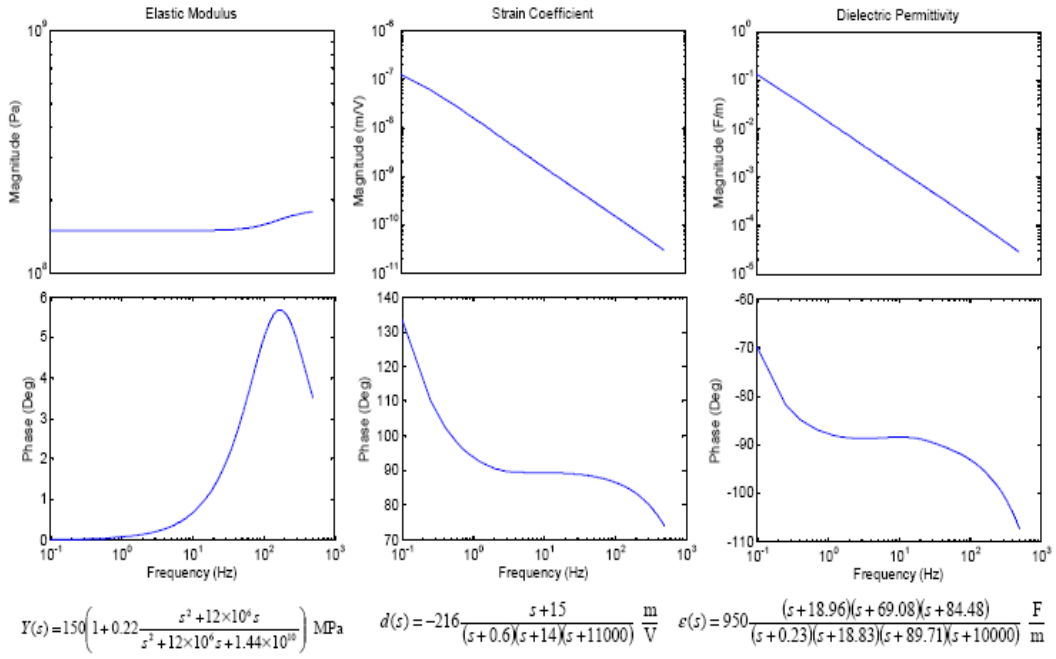


Figure 1.13 : Paramètres caractéristiques des polymères IPMC type Nafion-Platine [BUE 2006]

Sur la figure 1.13, la première colonne représente le module de Young du matériau en amplitude et phase en fonction de la fréquence de fonctionnement. La deuxième colonne, quant à elle, représente un coefficient de déformée, et la dernière colonne représente la permittivité diélectrique. Chacun de ces comportements est traduit par une loi fréquentielle écrite en bas de colonne.

1.5.5.4. Densité d'énergie récupérable

Il existe une variété de modèles que l'on peut classifier en modèles moléculaires et modèles globaux. **[SHA 2004-a]**.
Au niveau moléculaire, on distingue les modèles basés sur l'électrostatique, ceux basés sur l'hydraulique et les modèles mixtes.

Les modèles globaux sont basé sur les lois de conservations de la masse, du moment à l'échelle mésoscopique ou sont des modèle dit « boîte grise » : les paramètres sont déterminés empiriquement (interpolation). **[NEW 2002]**

Un modèle microscopique, tel un bilan de force au niveau moléculaire (sur un cation hydraté par exemple), est complet. Mais, il fait entrer en jeu des non linéarités et des paramètres difficiles à caractériser (nombre de cations hydratés, vecteur vitesse des cations hydratés…). Ce type de modélisation ne sera pas retenu.
On opte pour un modèle macroscopique simple **[GEN 2000]** dans un premier temps puis, pour un modèle plus complexe basé sur le principe variationnel **[BUE 2006]**.

a. Modèle macroscopique simple

L'énergie électrique au sein de ce matériau est donnée par l'équation 23.

$$W = \frac{1}{2} C V^2 \tag{23}$$

avec

C capacité du polymère IPMC mesurée expérimentalement (>100µF aux faibles fréquences)
V tension générée aux bornes du composant

P.G. De Gennes **[GEN 2000]** a proposé un modèle macroscopique simple pour modéliser l'effet direct et inverse (flexogelectric) au sein d'un polymère ionique type IPMC. Le système d'équation couplées est reportées au sein de l'équation 24.

$$\begin{cases} \vec{J} = \kappa \vec{E} - L_{12} \nabla \vec{p} \\ \vec{\varphi} = L_{21} \vec{E} - K_p \nabla \vec{p} \end{cases} \tag{24}$$

avec

$\vec{J}$ densité de courant
$\vec{E}$ champ électrique
$\nabla \vec{p}$ gradient de pression
$\vec{\varphi}$ flux d'eau
κ conductivité ionique mesurée expérimentalement (de 2.10^{-4} à 24.10^{-4} $S.cm^{-1}$)
K_p perméabilité de Darcy
$L_{12}=L_{21}=L$ coefficient de section mesuré expérimentalement (10^{-8} $(ms^{-1})/(Vm^{-1})$)

La structure étudiée est poutre encastrée-libre, au bout de laquelle un moment est appliqué. En régime quasi-statique, pour une densité de courant nulle (*J=0*), le champ électrique *E* généré aux bornes de l'IPMC est donné par l'équation 25.

$$E = \frac{12(1-2\nu)}{1-2\nu} \frac{L}{\kappa h^3} \Gamma \tag{25}$$

avec

υ coefficient de Poisson du polymère, proche de *0.49*
h épaisseur du polymère
Γ moment appliqué en bout de barre

Toutes les données, nécessaires pour cette équation, sont accessibles. Le moment appliqué en bout de poutre peut être calculé de différentes manières :

- à partir du produit force distance
- à partir de l'expression de la contrainte pour une structure type poutre encastrée-libre soit en fonction du moment appliqué et du moment d'inertie de la structure

On modélise un cantilever de 1cmx3cmx0.3mm, avec une contrainte typique supportée par le polymère ionique IPMC de 3MPa **[SHA 2004-b]**.

Au final, l'équation 25 permet de calculer le champ électrique produit par un moment mécanique. En combinant cette valeur de champ avec l'équation 23, l'énergie électrique récupérable est calculable. En fonction de la valeur calculée du moment, on obtient une densité d'énergie variant de 5 $\mu J.cm^{-3}$ à 0,33 $J.cm^{-3}$. Cette plage de densité d'énergie est assez vaste. Il est donc nécessaire de mettre en place un modèle plus précis.

b. Modèle macroscopique plus complexe

Nous avons développé un modèle original, basé sur le principe variationnel. A partir de la solution spatiale du déplacement mécanique, les grandeurs de sortie telle la tension électrique sont calculables et ainsi l'énergie électrique est estimable. Le détail de cette modélisation est présenté en annexe 1. Cette modélisation analytique est complétée et validée par une série de résultats expérimentaux.

Conclusion : Selon le modèle utilisant le principe variationnel, la densité d'énergie récupérable avec un polymère ionique type IPMC est de 0,3$\mu J.cm^{-3}$, ce qui est très faible au vu des autres polymères électroactifs. Confirmée par des mesures expérimentales, cette valeur de densité, est bien représentative de ces matériaux.

1.5.5.5. Dispositifs existants

Shahinpoor de l'université américaine du Nouveau Mexique a envisagé d'utiliser les IPMC en tant que batterie [**SHA 2004-b].**
Le polymère est sous forme d'un cantilever, de dimensions 1cmx3cm et d'épaisseur 0.3mm, soumis à des vibrations mécaniques (figure 1.14).

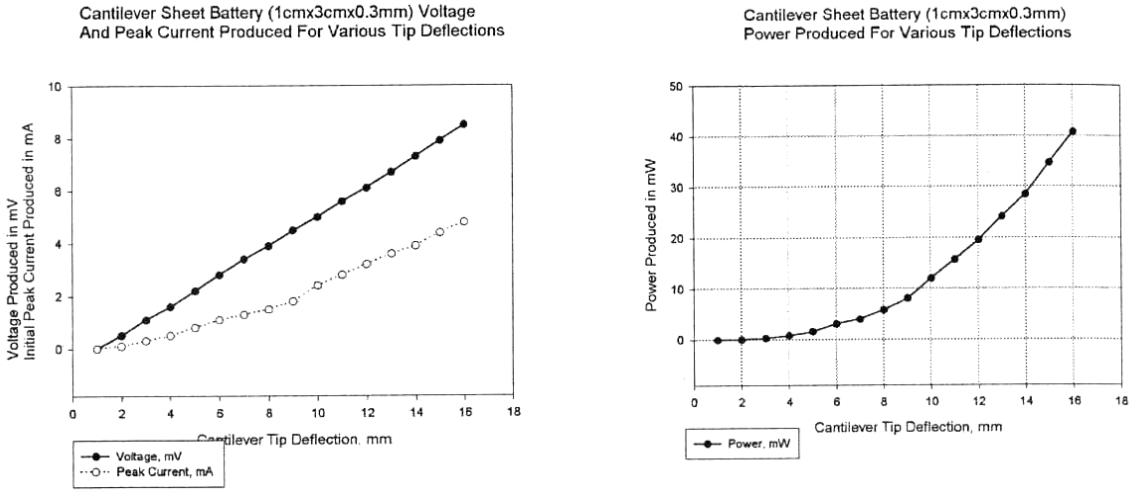

Cantilever Sheet Battery (1cmx3cmx0.3mm) Voltage
And Peak Current Produced For Various Tip Deflections
Voltage Produced in mV
Initial Peak Current Produced in mA
Cantilever Tip Deflection, mm
Voltage, mV
Peak Current, mA
Cantilever Sheet Battery (1cmx3cmx0.3mm)
Power Produced For Various Tip Deflections
Power Produced in mW
Cantilever Tip Deflection, mm
Power, mW

Figure 1.14 : Caractéristiques de la génération d'électricité via des polymères type IPMC [SHA 2004-b]

Les grandeurs de sortie, tensions et courants générés, sont proportionnelles à la déflexion du cantilever mais toutefois de faibles niveaux (mV et mA). Pour obtenir des puissances de l'ordre du milliwatt, nous avons estimé par un calcul simple qu'il faut travailler environ à 1000Hz, avec de grands débattements.

1.5.6 Les polymères conducteurs ioniques

1.5.6.1. Définition

Les polymères conducteurs sont de différentes natures. Ils peuvent être des dérivés de polysulfurinitride, de poly(p-phenylène) ou de monomères aromatiques (pyrrole). Fabriqués synthétiquement, tous ces polymères nécessitent un dopage chimique ou électrochimique. Ainsi, leur conductivité peut atteindre les 10^2 - 10^3 S.cm^{-1}. Largement étudiés à partir des années 1960, ils sont utilisés dans des applications électrochimiques type batterie, super capacité, ou pour des surfaces anti-statiques.

Pour réaliser un polymère électroactif ionique, le polymère conducteur est mis en association avec un électrolyte afin d'engendrer des réactions d'oxydoréductions. Ces dernières traduisent une absorption/expulsion d'ion et de solvant au sein du polymère conducteur, soit un changement de volumes au sein du matériau électroactif.

Les polymères conducteurs développent d'importes forces utiles (>350kN.m^{-2}) et des déplacements modérés (2%) sous de faibles tensions d'alimentation (2V). Ils sont flexibles car leur module de Young vaut 0,8GPa, et travaillent sur une très large plage de fréquence de 10^{-3} à 10^5Hz.

1.5.6.2. Mode générateur

Un modèle au premier ordre permet de décrire correctement le comportement des polymères conducteurs du type polypyrrole et polyaniline **[MAD 2001] [MAD 2002].**
Ce modèle relie la contrainte T et la déformée S aux charges électriques par unité de volume q_v.

$$S(t) = \Lambda q_v(t) + \frac{T(t)}{Y} \tag{26}$$

avec

Y module de Young du matériau
Λ coefficient reliant charges et déformée

D'après la littérature, le coefficient Λ varie entre 0.3 et 5.10^{-10}m^3.C^{-1}.

Un polymère conducteur peut être électriquement considéré comme une capacité. Si bien que l'équation 26 se transforme en équation 27.

$$S(t) = \Lambda C_V V + \frac{T(t)}{Y} \tag{27}$$

avec

C_v capacité volumique du polymère conducteur (expérimentalement $1{,}3.10^8$F.m^{-3})
V tension appliquée au polymère

Ce modèle est simple mais suffisant pour calculer l'énergie récupérable. Il ne prend pas en compte certains phénomènes récemment observés, comme la relaxation, mais permet d'exprime la tension en fonction de la déformation subie par le polymère et de son admittance (comportement capacitif).

Ainsi, à partir de la connaissance de la tension de sortie et vu que le polymère a un comportement capacitif, l'énergie électrique récupérable e_{rec} est facilement calculable par l'équation 28.

$$e_{rec} = \frac{1}{2} C_V V^2 \tag{28}$$

A partir de l'équation 28, la densité d'énergie électrique récupérable est estimée à 1mJ.cm^{-3}.

Conclusion : La densité d'énergie électrique récupérable est de 1mJ.cm^{-3}, valeur beaucoup plus faible en comparaison aux polymères électroniques. De plus, les polymères nécessitent un électrolyte pour réaliser les réactions d'oxydoréduction, ce qui engendre des contraintes technologiques de réalisation et d'utilisation.

1.5.6.3. Dispositifs existants

Takashima **[TAK 1997]** s'est intéressé à l'utilisation en sens inverse des polymères conducteurs ioniques. Un barreau de polyaniline de dimensions 10mmx2mmx0.03mm est plongé dans un électrolyte. Une contrainte, ou une déformée, est appliquée à ce barreau et de l'énergie électrique est ainsi générée. Le courant généré est synchronisé sur le changement de « charge » mécanique, mais le rendement d'un tel dispositif est très faible et vaut environ 0.01%.

Il est à noter qu'un brevet a été déposé sur ce principe. C'est un générateur rotatif utilisant des polymères conducteurs **[HUN 2000] [HUN 2002].**

1.5.7 Conclusion

Nous avons, au cours des paragraphes précédents, modélisé analytiquement plusieurs classes de polymères électroactifs. Les résultats de ces modélisations sont récapitulés au sein du tableau 1.7.

Les modèles développés peuvent servir de base pour toute comparaison entre polymères sur une application spécifique (structure et sollicitation mécaniques données).

		Densité d'énergie théorique récupérable max	Densité d'énergie expérience	Durée de vie	Procédé de fabrication	Forme de la matière	Coût	Température d'utilisation	Fréquence d'utilisation	Fonctionnement et forme de l'actionneur	Avantages	Inconvénients
		J.cm-3	**J.cm-3**									
Famille électronique	**Piézoélectricité céramique (PZT) polymère (PVDF) piézocomposite (MFC)**	56.10^{-3} 60.10^{-6} 30.10^{-3}	/	million de cycles	synthèse chimique	ruban, film, fibre	élevé	<300 <100 <70	<100kHz	• flexion : bender, cantilever, extender • compression : roll, tube, diaphgramme	• matériau actif • nombreuses formes et matériaux	• taille du dispositif ↓la fréquence ↑ • courant de sortie faible • rendement faible
	Electrostriction P(VDF-TrFE-CTFE)	0,3	/	/	moyen synthèse chimique	ruban, film	élevé	<100	<10kHz	• flexion : bender, cantilever, extender • compression : roll, tube, diaphgramme	• faibles pertes	• matériau passif : nécessite tension de polarisation
	Polymère diélectrique acrylate silicone	4,1 1,63	0,4 0,13	100 000 cycles 10 millions de cycles	facile achat commercial	ruban, film, fibre	faible	de -115°C à 260°C	<100Hz < 1kHz	• flexion : bender, cantilever, extender • compression : roll, tube, diaphgramme	• grande déformation • réalisation très facile • haute densité d'énergie	• matériau passif : nécessite tension de polarisation
	Papier électroactif	1.10^{-5}	/	/	facile	ruban	/	/	<100Hz	• flexion : bender, cantilever, extender	• matériau à priori actif	• faible énergie récupérable • matériau récent mal connu
Famille ionique	**IPMC**	3.10^{-7}	6.10^{-10}	1 million	procédé chimique non simple	ruban	de moyen à élevé(si utilisation de Nafion)	inférieur à 80°C	< à 100Hz choc possible	• flexion : bender, cantilever, extender	• matériau actif • en quasi-statique : relation linéaire entre déplacement et tension	• temps de réponse lents • densité d'énergie récupérable très faible aux faibles fréquences
	Polymère conducteur	10^{-3}	/	/	moyen, utilisation électrolyte	ruban	/	/	<10Hz	• compression : diagphramme, trapèze	• matériau actif	• temps de réponse lents • densité d'énergie récupérable très faible aux faibles fréquences

Tableau 1.7 : Caractéristiques principales de six polymères électroactifs en mode générateur

Au vu des estimations du tableau 1.7, le polymère le plus performant en terme de densité d'énergie est le polymère diélectrique avec 4,1J.cm^{-3} qui constituera donc le convertisseur électromécanique de l'application que nous allons développer.

En effet, les polymères électrostricifs ont une densité de 0.3J.cm^{-3}, suivis par les polymères piézoélectriques 0.03Jcm^{-3}, puis les polymères ioniques type IPMC 0.3µJ.cm^{-3}. Les polymères diélectriques récupèrent donc 10 fois plus que les polymères électrostrictifs et 100 fois plus que les polymères piézoélectriques.

Outre ce haut seuil d'énergie, cette technologie est très bas coût et est facile à réaliser, donc beaucoup plus propice à un marché de masse.

Toutefois, les polymères diélectriques ont un inconvénient de taille : ils nécessitent une tension de polarisation. Cette polarisation peut être effectuée par un générateur extérieur, un matériau actif du type piézoélectrique ou encore un électret. Dans tous les cas, une solution avec un polymère diélectrique s'orientera forcément vers une solution hybride.

Du fait qu'ils sont très peu utilisés, le développement d'un dispositif générateur utilisant ces polymères ouvre beaucoup de perspectives, de ruptures avec les solutions existantes, de levée de verrous, soit un large potentiel d'innovations technologiques.

1.6 Conclusions

Dans ce chapitre, nous avons présenté les différentes classes de polymères, leurs principales propriétés et leur domaine d'application. Un état de l'art complet a souligné le peu d'applications existantes utilisant les polymères électroactifs et fonctionnant aux fréquences ambiantes (f<100Hz).

En effet, la majorité des structures récupératrices d'énergie mécanique, développées ces dernières années, utilisent les matériaux piézoélectriques comme convertisseur direct d'énergie. Mais, la plupart de ces systèmes sont à base de céramiques rigides, et utilisent essentiellement les vibrations comme source mécanique d'entrée **[SOD 2004] [MAR 2005]**. Ces dispositifs rigides ne sont pas l'objet de notre étude, et n'ont pas été présentés.

Relevons aussi l'existence de structures de conversion électrostatique, ayant un large spectre de fonctionnement et utilisant les vibrations comme source d'entrée mécanique. A titre d'exemple, la structure, développée par Despesse, fonctionne de 20Hz à 100Hz, et récupère 1mW à 50Hz, pour un volume de 1cm^3. Cet exemple nous donne un point de référence pour de futures comparaisons **[DES 2005]**.

Il est clair que la densité d'énergie des polymères électroactifs est plus faible que celle des piles mais elle peut être suffisante pour alimenter un microsystème. Les avantages notables des polymères électroactifs par rapport aux piles sont leur durée de vie théoriquement infinie et leur aspect « écologique ».

Fort de ces constats, nous pouvons nous positionner en développant un système novateur de récupération à base de polymères électroactifs et plus particulièrement de polymères diélectriques.
Dans le second chapitre de cette thèse, nous présentons le fonctionnement et caractérisons le comportement des polymères diélectriques.

Chapitre 2 : Les polymères diélectriques – Caractérisations

Ce chapitre est consacré au choix et à la caractérisation des polymères diélectriques dans l'optique de mettre en place un modèle analytique fiable.

En premier lieu, nous rappelons le fonctionnement de ces polymères en mode actionneur et en mode générateur.

Puis, nous comparons les polymères diélectriques utilisables afin de choisir le meilleur candidat. Nous étudions aussi les différentes électrodes susceptibles d'être associées à ce polymère : laquelle choisir ? comment la réaliser ?

Ce choix opéré, nous caractériserons précisément le matériau retenu. Nous tâchons de définir l'influence des paramètres extérieurs, tels la température ou la fréquence d'utilisation, sur les constantes électriques et mécaniques du matériau choisi.

2.1 Mode de fonctionnement

2.1.1 Mode actionneur

Le polymère diélectrique est un polymère type silicone ou acrylique. Dans une configuration type actionneur, il est pris en sandwich entre deux électrodes souples et fonctionne sur le principe d'une capacité variable **[BAR 2001]**. Lorsque l'on applique une tension, une pression électrostatique σ_m, appelée pression effective de Maxwell, apparaît aux bornes des électrodes (équation 29) **[PEL 1998]**.

$$\sigma_m = \varepsilon_0 \varepsilon_r E^2 \tag{29}$$

avec

ε_0 permittivité diélectrique du vide
ε_r permittivité relative du diélectrique
E champ électrique en $MV.m^{-1}$

Cette pression électrostatique induit une pression mécanique sur les électrodes supérieure et inférieure. Si bien que le polymère se contracte selon son épaisseur (x_3) et s'étend selon son aire (x_1, x_2) (figure 2.1).
Les électrodes doivent suivre les déformations subies par le polymère. Elles doivent être hautement conductrices, parfaitement modulables et modelables. Pour ne pas rigidifier la structure, leur épaisseur doit être fine en comparaison de celle du polymère diélectrique.

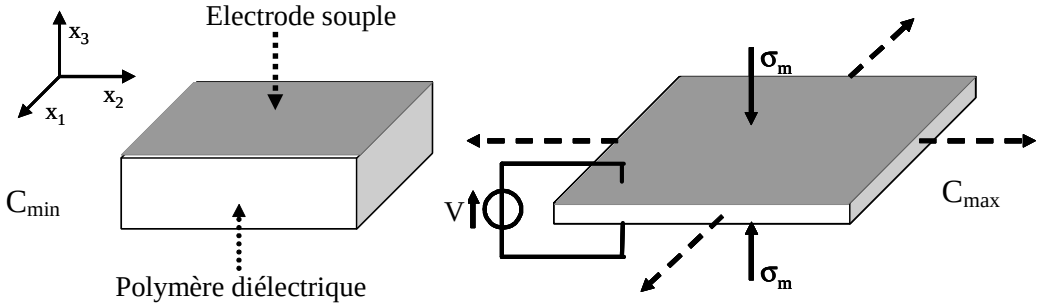


Figure 2.1 : Principe de fonctionnement en mode actionneur d'un polymère diélectrique

<u>Remarque :</u> *Une capacité variable classique opère des variations seulement selon un axe, en général selon l'épaisseur, alors qu'une capacité variable en polymère diélectrique souple opère des changements de dimensions selon trois directions (plan et épaisseur).*

La pression effective (équation 29) est calculée à partir de l'énergie électrique $e_{élec}$ stockée au sein de la structure avec l'hypothèse que le polymère travaille à volume constant (équation 30).

$$\sigma_m = \frac{1}{A}\frac{\partial e_{élec}}{\partial x_3} = \frac{1}{A}\frac{\partial}{\partial x_3}\left(\frac{1}{2}CV^2\right) = \frac{1}{A}\frac{\partial}{\partial x_3}\left(\frac{1}{2}\varepsilon_0\varepsilon_r\frac{A}{z}V^2\right) = \varepsilon_0\varepsilon_r E^2 \tag{30}$$

avec

A aire du diélectrique
x_3 épaisseur du diélectrique

La pression effective de Maxwell σ_m pour un polymère diélectrique est le double de la pression de Maxwell obtenue pour une capacité classique à électrodes planes et parallèles. La capacité à base de diélectrique se déforme en surface ce qui n'est pas le cas d'une capacité classique. Cette pression est aussi calculable à partir du tenseur simplifié de Maxwell T^M (équation 31).

$$T_{ij}^{M} = \varepsilon_{jm} E_i E_m - \frac{1}{2} \delta_{ij} \varepsilon E^2 \tag{31}$$

avec

δ_{ij} indice de Kronecker

ε permittivité du matériau en F.m^{-1} ($\varepsilon = \varepsilon_0 \varepsilon_r$)

Ce tenseur est dit simplifié car il ne prend pas en compte les variations possibles de la permittivité relative en fonction de la déformée, soit l'électrostriction. Ce phénomène est présent dans tous les matériaux diélectriques. Ainsi, la contrainte électrostrictive dépend de la déformation alors que la pression de Maxwell résulte de la polarisation appliquée au matériau. Toutefois, les coefficients électrostrictifs sont faibles pour les polymères diélectriques étudiés ce qui permet de négliger l'électrostriction au regard de la pression de Maxwell au sein de ces matériaux dans notre étude **[KOF 2001] [SOM 2002] [KOF 2003] [LIU 2004] [YAN 2006]**.

2.1.2 Mode générateur

Si on applique une tension électrique à un élastomère étiré, des charges électriques sont déposées sur les électrodes. Lorsque l'on relâche la contrainte mécanique, la contraction qui en découle (pression mécanique) travaille contre la pression électrostatique et génère ainsi de l'énergie électrique **[PEL 2001]** (figure 2.2).

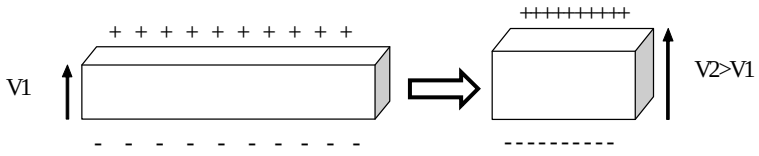
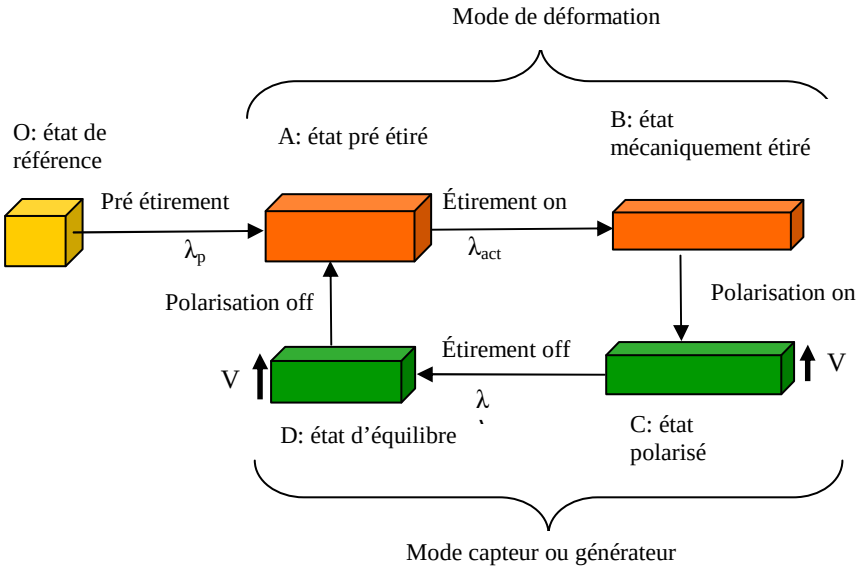


Figure 2.2 : Principe de fonctionnement en mode générateur d'un polymère diélectrique

Pour obtenir la phase active de la figure 2.2, il est nécessaire de réaliser des cycles avec une tension de polarisation fournie par un générateur externe, comme décrit sur la figure 2.3 ci-dessous :



$$\lambda_p = \frac{l_A}{l_O}$$

$$\lambda_{act} = \frac{l_B}{l_A}$$

$$\lambda = \frac{l_D}{l_C}$$

avec l_X longueur à la phase X du cycle

Figure 2.3 : Cycle de fonctionnement en mode générateur d'un polymère diélectrique

λ est le coefficient d'extension, c'est-à-dire le rapport entre dimensions finale et initiale d'une transition.

Dans un premier temps, on étire mécaniquement le polymère : phase A à B. Une fois déformé, on applique des charges sur le diélectrique via une tension de polarisation V : phase B à C. Puis, le polymère est libéré et se contracte naturellement jusqu'à un état d'équilibre entre force électrique et force mécanique : phase C à D. C'est la phase dite active : les variations du coefficient d'extension entraînent des variations de capacité. Des charges sont transférées vers la source de tension, il y a production d'énergie. Enfin, la tension de polarisation V est coupée et le polymère peut retrouver ses dimensions d'origine : phase D à A.

<u>Remarque 1 :</u> Si l'on souhaite abaisser la valeur de la tension de polarisation V, une solution est de diminuer l'épaisseur du polymère en le pré-déformant d'un coefficient d'extension λ_p : phase 0 à A.

<u>Remarque 2 :</u> On peut réaliser un cycle à tension de polarisation V constante, un cycle à charge Q constante ou un cycle à champ électrique E constant.

2.1.3 Zone actionneur et générateur

Au regard des modes actionneur et générateur décrits ci dessus, le fonctionnement d'un polymère diélectrique est donc basé sur l'équilibre entre force électrique (Maxwell) et force mécanique.

Ainsi, pour chaque coefficient d'extension λ subi par le matériau, il existe un champ électrique tel que les forces électrostatique et mécanique se compensent : état d'équilibre de la phase D. On peut alors tracer la pression électrostatique σ_m en fonction du coefficient d'extension λ et délimiter les zones actionneur et générateur (figure 2.4).

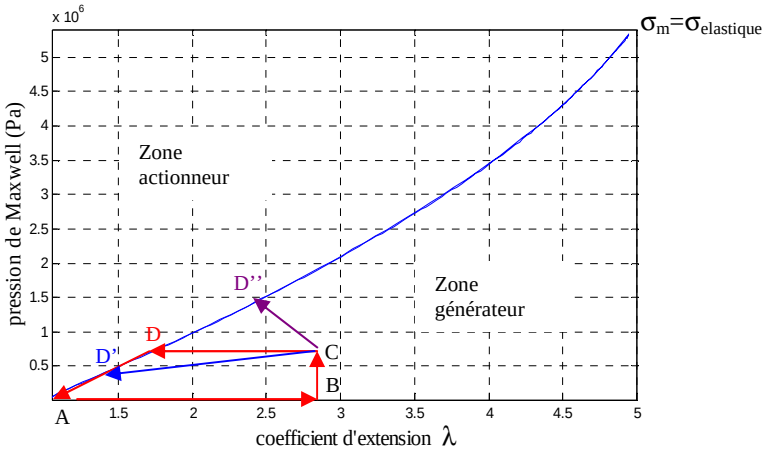


Figure 2.4 : Zones actionneur-générateur d'un polymère diélectrique

Si la pression électrostatique est supérieure aux forces mécaniques alors le polymère est en mode actionneur (zone supérieure de la figure 2.4). Sinon, il est en mode générateur (zone inférieure de la figure 2.4).

Au sein de la zone générateur, une multitude de cycles est réalisable mais trois cycles principaux peuvent se différencier sur la figure 2.4. Lors d'un cycle à champ électrique constant, la contrainte de Maxwell (équation 29) est constante quelque soit la déformée subie par le polymère (tracé ABCD). Pour un cycle à tension V constante, la contrainte de Maxwell diminue avec l'augmentation de l'épaisseur du polymère soit avec la diminution du coefficient d'extension λ. A l'inverse, pour un cycle à charge Q constante, la contrainte de Maxwell augmente avec la diminution de l'épaisseur. Les point D' et D'' relatent ces variations (équations 73 et 74 du chapitre 3).

Or, un cycle à champ électrique constant est techniquement difficile à réaliser à cause du retrait continu de charges de la structure lors de la phase active. Si bien que dans cette étude, seule les deux

modes principaux de fonctionnement à charge Q constante et à tension V constante seront étudiés et comparés.

2.2 Théorie de la récupération d'énergie

2.2.1 Energie récupérable

Comme décrit précédemment, un polymère diélectrique fonctionne comme une capacité variable. Pour une capacité plane et un cycle à charge Q constante ou tension V constante, l'énergie électrique produite e_{pro} est donnée par l'équation 32.

$$e_{pro} = \frac{1}{2}(C_D V_D^2 - C_C V_C^2) \tag{32}$$

Avec C_D, V_D capacité et tension au point D du cycle de la figure 2.3
C_C, V_C capacité et tension au point C du cycle de la figure 2.3

L'énergie électrique produite e_{pro} est directement liée aux valeurs des grandeurs électriques au point C et D du cycle générateur de la figure 2.3. Ces deux états (C et D) sont connus grâce à la résolution de l'équation du mouvement du polymère lors de la phase active (C à D). Cette équation devra prendre en compte les sollicitations passées (phase O à A, A à B et B à C), les conditions aux limites imposées au polymère et les perturbations extérieures liées à l'environnement.

2.2.2 Modèle analytique à développer

Le cycle de fonctionnement en mode générateur de la figure 2.3 s'adapte à chaque application permettant d'identifier chaque phase (OA, AB, BC) et les déformations mécaniques associées. A partir de ces informations, l'équation du mouvement, pour une structure de masse m, lors de la phase active (C à D) peut être mise en place (équation 33).

$$m\vec{a} = \vec{f}_{élastique} + \vec{f}_{Maxwell} + \vec{f}_{extérieure} + \vec{f}_{poids} \tag{33}$$

L'équilibre au point D est fonction de toutes ces forces et des conditions aux limites imposées à la structure.

La force élastique $\vec{f}_{elastique}$ traduit les efforts mécaniques au sein du polymère et est fonction des déformations des phases antérieures (λ_p, λ_{act}) et, des constantes mécaniques propres au polymère qui dépendent des paramètres extérieurs.

$$\vec{f}_{elastique} = g(\breve{C}, \lambda, \lambda_{act}, \lambda_p) \tag{34}$$

avec
$\breve{C}$ paramètre du matériau qui dépend de la vitesse de sollicitation de la structure $v_{sollicitation}$ et de la température Θ de la structure

La force de Maxwell $\vec{f}_{\max well}$ traduit la pression électrostatique subie par le polymère lorsque ce dernier est polarisé et est aussi fonction des phases antérieures (λ_p, λ_{act}).

$$\vec{f}_{\max well} = g(\varepsilon_r, \lambda, \lambda_{act}, \lambda_p) \tag{35}$$

avec
ε_r permittivité relative du matériau qui dépend de la prédéformation λ_p, de la fréquence f et de la température Θ

Les forces extérieures sont les forces appliquées par un opérateur ou un objet (ressort par exemple) sur la structure, et sont soit connues soit facilement déterminables. La dernière force de l'équation 33 correspond au poids de la structure.

Ainsi, connaître les variations des paramètres mécaniques $\breve{C}$ et de la permittivité relative ε_r permet de déterminer avec précision les forces mécaniques et électriques mises en jeu au sein de l'équation 33, et donc la position d'équilibre. L'énergie produite est alors calculable.

Outre le calcul de l'énergie produite, cette modélisation nous fournit d'autres renseignements forts utiles pour la conception d'une application de récupération d'énergie mécanique tels que les forces développées, l'échauffement de la structure.

Notons que l'équation 33 permet de calculer l'énergie produite. A cette énergie doivent être soustraites les différentes pertes opérant durant le cycle pour obtenir l'énergie récupérable e_{rec}.

$$e_{rec} = e_{pro} - pertes_{élec} - pertes_{méca} \tag{36}$$

Les pertes électriques sont au nombre de trois :

- les pertes par conduction (volumique et surfacique) traduisant l'apparition d'un courant de fuite au travers de la résistance volumique et surfacique,
- les pertes par diffusion,
- les pertes diélectriques traduisant l'énergie absorbée par la structure lors de cycle en fréquence.

Ces pertes sont fonction de certains paramètres du matériau : résistance volumique R_p, résistance surfacique R_e , facteur de pertes ε'' ou angle de pertes $tan(\delta)$, eux-mêmes susceptibles de varier avec la fréquence, la température ou la précontrainte. Ainsi, identifier correctement ces paramètres électriques permet d'estimer avec précision les pertes électriques au sein du matériau.

Les pertes mécaniques sont essentiellement d'origine viscoélastique et se traduisent par un cycle d'hystérésis mécanique non nul (noté CHM).

Au final, l'énergie récupérée répond à l'expression 37.

$$\begin{aligned} e_{rec} &= e_{pro}(\lambda, \lambda_{act}, \lambda_p, \varepsilon_r, \breve{C}) - pertes_{élec}[R_p(f, \Theta, \lambda_p), R_e(f, \Theta, \lambda_{act}), \varepsilon''(f, \Theta, \lambda_p)] \\ &- pertes_{méca}[CHM(f, \Theta, \lambda_p)] \end{aligned} \tag{37}$$

La fréquence *f*, la température Θ et la prédéformation λ_p sont les principaux facteurs influant sur les constantes intrinsèques du polymère. Toutefois, l'humidité joue aussi un rôle. Nous supposons que l'application sera utilisée dans un environnement assez sec typiquement un taux d'humidité de 65%, qui est la valeur moyenne en France. Les variations de ce paramètre humidité sont alors associées aux tests en vieillissement du matériau. En effet, le vieillissement du polymère est simulé par une haute température et un fort taux d'humidité. Les mesures, sous cet environnement de test, permettent d'en déduire des lois de vieillissement du polymère.

Conclusion : L'énergie récupérable est fonction des variations possibles des paramètres électriques et mécaniques du matériau. C'est l'énergie disponible en sortie de l'étage de conversion électromécanique, et elle ne prend pas en compte le rendement de la gestion électrique. Cet aspect de rendement global incluant la gestion électrique sera abordé au sein du quatrième chapitre : développement d'une application novatrice et piste pour la réalisation de la gestion électrique associée à cette application.

2.3 Choix des matériaux

2.3.1 Choix du polymère diélectrique

En 1998, Pelrine et Kornbluh (SRI International – USA) ont démontré la potentialité de nombreux polymères commerciaux à être utilisés comme des polymères diélectriques dans des applications type muscle artificiel **[PEL 1998] [PEL 1999] [KOR 2000]**. Ils ont été les pionniers concernant l'étude et l'utilisation de tels polymères. Depuis, de nombreux groupes de recherches à travers le monde (Suisse, Nouvelle-Zélande, Danemark, Italie…) travaillent sur ces matériaux, de leur fabrication **[HA 2007]** à leur utilisation **[CAR 2005-b]** en passant par leur caractérisation **[SOM 2002]** et leur modélisation **[YAN 2005] [PLA 2006] [WIS 2007]**. Ainsi, ces polymères diélectriques, de par leur combinaison de propriétés, sont pressentis comme nouveaux actionneurs pour la robotique, la mécatronique, la biomimétique **[KOR 2002] [CAR 2006]**.

De technologie récente, les propriétés de ces matériaux sont en permanente évolution et de nouveaux candidats sont découverts chaque jour. De plus, l'influence de certains paramètres extérieurs sur le comportement du polymère reste mal cernée et sujete à des résultats contradictoires.

Toutefois, la famille des polymères diélectriques possède des caractéristiques reconnaissables. Ils supportent de larges déformations comprises entre 10% et 200% en moyenne, sous un champ électrique élevé supérieur à $100V.\mu m^{-1}$. La plupart ont aussi une constante diélectrique ε_r et une rigidité élevée. Ils sont aussi souples (module de Young de l'ordre de 1MPa), et bas coûts.

Le tableau 2.1 récapitule les principales caractéristiques pour les polymères commerciaux identifiés comme diélectriques **[KOR 2000].**

	Densité d'énergie élastique	Pression	Déformée relative en épaisseur	Déformée relative dans l'aire	Module de Young	Champ électrique	Permittivité diélectrique
	$J.cm^{-3}$	MPa	%	%	MPa	$V.um^{-1}$	à 1 kHz
Acrylique 3M VHB 4910	3,4	7,2	-61	158	2	412	4,8
Silicone Nusil CF 19-2186	0,75	3	-39	63	1	350	2,8
Silicone Dow Corning HS3	0,098	0,3	-48	93	0,125	110	2,8
Polyurethane Deerfield PT 6100 S	0,09	1,6	-11	12	17	160	7
Silicone Dow Corning Sylgard 186	0,096	0,5	-32	47	0,7	144	2,8
Silicone Dow Corning 730	0,064	0,039	-28	39	0,5	80	6,9
Fluoroelastomer LaurenL 143HC	0,027	0,65	-8	9	2,5	32	12,7
Polybutadiene Aldrich PBD	0,013	0,2	-12	14	1,7	76	4
Isoprene Natural Rubber Latex	0,006	0,11	-11	12	0,85	67	2,7

Tableau 2.1 : Caractéristiques principales de quelques polymères diélectriques [KOR 2000]

Au vu du tableau 2.1, le polymère 3M VHB 4910 possède la plus haute densité d'énergie élastique en mode actionneur. Mais, le fluoroélastomère Laurent L 143HC possède quant à lui la plus forte constante diélectrique.

Pour une application en mode générateur, l'essentiel est l'énergie électrique récupérable ce qui se traduit par une combinaison de la plus grande variation de capacité, de la plus grande permittivité diélectrique et du plus haut champ électrique de claquage. Le tableau 2.2 énumère ces critères pour les polymères cités au sein du tableau 2.1.

On note que, en mode actionneur ou générateur, les limites de fonctionnement de ces polymères correspondent aux pertes viscoélastiques, à la fréquence limite d'utilisation et à la constante de temps électrique (temps de charge). Ainsi, les polymères acrylates sont généralement utilisés pour des fréquences inférieures à 100Hz, et les silicones pour des fréquences inférieures au kHz.

	Permittivité diélectrique à 1kHz	Variation de capacité pF	Champ électrique $V.\mu m^{-1}$
Acrylate 3M VHB 4910	4,8	68,3	412
Silicone Nusil CF 19-2186	2,8	8,32	350
Silicone Dow Corning HS3	2,8	15,3	110
Polyurethane Deerfield PT 6100 S	7	2,54	160
Silicone Dow Corning Sylgard 186	2,8	5,4	144
Silicone Dow Corning 730	6,9	10,3	80
Fluoroelastomer LaurenL 143HC	12,7	3,28	32
Polybutadiene Aldrich PBD	4	1,69	76
Isoprene Natural Rubber Latex	2,7	0,978	67

Tableau 2.2 : Critères pour le mode générateur pour différents polymères diélectriques

Au vu du tableau 2.2, le polymère le plus intéressant est le polymère VBH 4910 de 3M car il combine grande variation de capacité, forte permittivité diélectrique (4.7) et haut champ électrique de claquage ($412V.\mu m^{-1}$).

Ce polymère quasi transparent est disponible sous forme de ruban adhésif double faces de différentes largeurs, différentes épaisseurs et à un prix très faible. La formule chimique de ce polymère n'est pas divulguée par la société 3M. La seule précision est que ce polymère est un polyacrylate composé d'une longue chaîne carbonée avec sûrement des groupes à base d'oxygène sur les chaînes courtes.

Les propriétés mécaniques, électriques et thermiques nécessaires pour la mise en place d'une modélisation fiable sont donc relatives à ce polymère 3M VHB 4910. Plusieurs séries de caractérisations ont été mises en place afin de déterminer avec précision le comportement de ce polymère.

Toutefois, avant de caractériser le polymère, les électrodes utilisables doivent être déterminées car elles peuvent influer sur le comportement de ce dernier.

2.3.2 Choix des électrodes

Pour une récupération d'énergie optimale, il est nécessaire d'utiliser les polymères diélectriques en grandes déformation. A ce titre, les électrodes doivent être souples, c'est à dire suivre parfaitement les mouvements du polymère. En effet, l'électrode doit pouvoir se déformer suffisamment sans craquer pour garder sa conductivité constante même en grandes déformations et pour ne pas rigidifier la structure. A partir de ces critères, le tableau 2.3 récapitule les différentes électrodes envisageables ainsi que leur procédé de fabrication. **[CHE 1999] [KOF 2001] [PEL 2001] [BEN 2002] [SOM 2002] [WAN 2002] [CAR 2003] [KOF 2003] [AKB 2004] [ZHA 2004] [CHO 2005] [KOF 2005] [BOL 2006] [DEL 2006] [MAT 2006] [YAN 2006] [KHO 2007] [ROS 2007] [WIS 2007]** .

	Type Electrode	Fabrication/Dépôts/Société	Conductivité/ Résistivité	Déformation maximale	Avantages	Inconvénients
Métal	or	vaporisation,métalisation,…	élevée	30%	• très conducteur	• contraint mécaniquement le polymère
	zig zag en or	zig zag en or très conducteur sur une électrode peu conductrice	élevée		• très conducteur	
	argent	dépôt d'un film fin	bonne	33%	• champ electrique de claquage 90MV/m • test en fatigue 3 millions de cycles sous 2.5kV à 30Hz	• module d'Young du polymère seul 0.8MPa et du sandwich 1.5MPa
Graisse commerciale	argent	• Circuit Work 7200 de Chemtronics • silver-doped grease de AI technology (ELGR 8501)	bonne	max	• efficacité 86% • dépôt facile : sérigraphie • resistance 0.001ohm	
	carbone	• Circuit Work 7100 de Chemtronics • Stock well RTV 60-CON • Tecnolube seal, U.S.A, Nyogel 755G • 846-80G de MG Chemicals • FLOIL GE-676 de Kanto-Japan	bonne	max	• efficacité 85% • dépôt facile : sérigraphie • resistance 1ohm	
Pate	argent	Dotite D-550 de chez Fujikura Kasei				
	cuivre	helios				
Spray	graphite	N-77 Due-ci elctronic	faible	min	• dépôt facile	• conductivité 20kohm/cm
Noir de carbone		noir de carbone (Ketjenblack EC-300J de Akzo Nobel)+heptane	bonne	max	• grande déformation	• synthèse à réaliser
		noir de carbone (Vulcan XC 72R by Cabot) déposé par hairbrush	bonne	max	• grande déformation	• synthèse à réaliser
		Wacker Elastosil 43 RTV+noir de carbone (Ketjenblack EC-300J)+heptane	bonne	max	• grande déformation	• synthèse à réaliser
Graisse maison		mélange de polymère (Sylgard 184 et 186) et de graphite (Merk's)	bonne	max	• grande déformation	• synthèse à réaliser
		pdms+heptane+noir de carbone (Ketjenblack)	bonne	max	• électrode stable • grande déformation	• synthèse à réaliser
Elastomère		scotch en silicone RTV-1+heptane+noir de carbone (Ketjenblack)	élevée	max	• électrode stable • 10-7S/cm à 10-2Hz	• synthèse à réaliser
		scotch conducteur au carbone (RTV 60-CON)	bonne	max	• efficacité 84% • résistance 10ohm	• synthèse à réaliser
Mélange		1g poudre de graphite (TIMREX SP30) et 10ml huile silicone (DC 200/100cs)	bonne	max	• grande déformation	• synthèse à réaliser
Polymère conducteur	polypyrrole	synthèse chimique à base de pyrrole (Wajo pure Chemical)	élevée	min	• très conducteur	• au dessus de 40°C, Ppy phenomène de déshydratation
	polyaniline	synthèse chimique	élevée	min	• très conducteur	• au dessus de 100°C, PANI déprotonation graduelle
Ion-implanted electrode	Ti ion	implantation d'ion	3Mohm/□ (vide), 120Mohm/□ (air)	30%	• compatible avec les technologies de conception MEMS	• oxydation à l'air
Métalisation		sel de platine incorporé directement dans l'élastomère (mixage et homogénisation), puis exposé aux ultraviolet, puis réduit avec une solution de borohydride de sodium		30%		• déformation maximale de 40% pour une conductivité de 10-4S/cm • synthèse chimique

Tableau 2.3 : Différentes électrodes envisageables

Au vu du tableau 2.3, les électrodes métalliques ne se déforment pas suffisamment pour notre application. De même les peintures et les encres conductrices (non évoquées au sein du tableau 2.3) ne se déforment pas assez : au maximum 30%.

Les solutions à base de pâte ne sont pas suffisamment conductrices et ne peuvent former une électrode. Les polymères conducteurs classiques (polypyrrole ou polyaniline) doivent être synthétisés chimiquement. Même s'ils sont de bons conducteurs, ils se déforment trop peu (de l'ordre de 10%).

Ainsi, deux catégories se démarquent pour la réalisation des électrodes :

- les graisses conductrices commerciales, achetées toutes faites et déposées par sérigraphie manuelle (en vert dans le tableau 2.3)
- les polymères diélectriques dopés par des charges : graisses « maison », élastomères, mélanges et noir de carbone. Cette synthèse reste simple comparée à la synthèse des polymères conducteurs tel le polypyrrole. Ces électrodes peuvent être déposées par sérigraphie, par pulvérisation, par évaporation (en rose dans le tableau 2.3).

Ces deux catégories de matériaux suivent correctement les déformations du polymère et le rigidifie très peu. Ces différentes électrodes se distinguent donc en termes de conductivité et de procédé de fabrication. Le meilleur compromis semble être une électrode en graisse conductrice d'argent disponible dans le commerce : Circuit Work 7100. Elle possède la plus faible résistance de surface (0,001Ω), le meilleur rendement en mode actionneur (efficacité de 86%) et semble très facilement à déposer.

Il est à noter que pour le développement de structures millimétriques, les électrodes ne peuvent être réalisées avec cette graisse non compatible avec les procédés de réalisation MEMS. On peut alors s'oriente vers des techniques mettant en œuvre l'implantation ionique (tableau 2.3), des électrodes en nanotubes ou nanofils de carbone. Des dépôts de polymère conducteurs ou mélanges à base de noir de carbone sont aussi envisageables mais il faut s'assurer que le dépôt conducteur « colle bien » au diélectrique (surface hydrophobe ou hydrophile, force surfacique). Toutefois, les déformations supportées par de tels dispositifs sont moyennes, avec des valeurs typiques allant de 30 à 50%.

Nous avons sélectionnés le polymère et l'électrode. Il est maintenant nécessaire de réaliser une caractérisation précise de ces matériaux pour déterminer les propriétés électriques et mécaniques.

2.4 Caractérisation mécanique du polymère 3M VBH 4910

Le but de cette partie est d'identifier la loi de comportement du matériau. Les constantes mécaniques et leurs variations possibles en fonction des paramètres extérieurs, telles la vitesse de sollicitation, la température et la précontrainte, sont déterminées. Les pertes d'origine mécanique sont aussi abordées au sein de ce sous chapitre

2.4.1 Modèle analytique

2.4.1.1 Description du comportement du polymère

Le polymère 3M VHB 4910 et ses dérivés (3M VHB 4905, F 9473PC, F 9469PC, F 9460PC) sont des élastomères. Ce sont des composés synthétiques (polyacrylate) travaillant en grandes déformations élastiques. Ils ne peuvent être modélisés par un simple module de Young (loi linéaire valable en dessous de 10% de déformation) et nécessitent une loi de comportement hyperélastique plus complexe, valide pour de très grandes déformations (quelques centaines de %) **[MOO 1940] [KOF 2001] [ROY 2001] [SAA 2003] [GOU 2005] [HUY 2005] [KOF 2005] [YAN 2005]**.

En effet, les grandes déformations introduisent plusieurs effets non linéaires : non linéarités dissipative, comportementale ou géométrique. Les non linéarités comportementales sont traduites par

le choix opportun d'une loi de comportement et les non linéarités géométriques expriment les grandes déformations subies par le polymère. Les non linéarités dissipatives sont occasionnées par les variations de certains paramètres du matériau en fonction de la fréquence d'utilisation ou de la température. Ces dernières sont mises en avant par les essais que nous avons réalisés (2.4 et 2.5) démontrant la dépendance en température de nombreux paramètres caractéristiques du polymère 3M VHB 4910.

Outre ces trois non linéarités, des phénomènes de relaxation et de fluage apparaissent au sein du polymère. Ce matériau développe une dépendance temporelle : la contrainte agissant sur le matériau dépend de toute l'histoire de la déformation. C'est un matériau viscoélastique.

2.4.1.2 Hyperélasticité et viscoélasticité

En hyperélasticité, le tenseur des contraintes nominales principales σ_i (force divisée par la section initiale) dérive d'une densité d'énergie appelée « énergie de déformation » pour le matériau, notée W (équation 38).

$$\sigma_i = \frac{\partial W}{\partial \lambda_i} - \frac{1}{\lambda_i} p \tag{38}$$

avec

λ_i ($i=1, 2, 3$) coefficient d'extension selon les directions principales
p pression hydrostatique inconnue et définie par les conditions aux limites

Le tenseur des contraintes principales T_i (force divisée par la section actuelle) est donné par l'équation 39.

$$T_i = \lambda_i \frac{\partial W}{\partial \lambda_i} - p \tag{39}$$

En mécanique des milieux continu, la diagonalisation du tenseur des contraintes (9 composantes) permet d'obtenir le tenseur des contraintes principales (3 composantes). Ce processus de diagonalisation fait apparaître des invariants particuliers du tenseur de contrainte, c'est-à-dire des grandeurs qui gardent toujours la même valeur dans n'importe quel système de coordonnées utilisé. Ces invariants sont utilisés pour définir des critères de rupture tel que le critère de Von Mises par exemple, ou les énergies de déformations W. L'équation 40 donne l'expression des trois premiers invariants pour un tenseur de contrainte σ quelconque (*Tr* est l'abréviation de trace et *det* est l'abréviation de déterminant).

$$\begin{aligned} I_1 &= Tr|\sigma| \\ I_2 &= \frac{1}{2}[Tr(\sigma)^2 - Tr(\sigma^2)] \\ I_3 &= \det(\sigma) \end{aligned} \tag{40}$$

Ces mêmes formules d'invariants sont appliquées pour d'autres tenseurs mécaniques comme le tenseur des déformées, le tenseur des déformations surfaciques locales (tenseur de Cauchy Green gauche aussi appelé tenseur de Finger)…

La densité d'énergie de déformation W correspond à des modèles empiriques dont les plus connus sont les modèles de Rivlin généralisé (équation 41) et de Ogden (équation 42).

$$W = \sum_{i+j=1}^{N} \breve{C}_{ij} (I_1 - 3)^i (I_2 - 3)^j \tag{41}$$

avec

$\breve{C}_{ij}$ constantes propres au matériau
I_1, I_2 premier et deuxième invariant du tenseur de Finger *B*, calculés à partir des formules 40

$$W = \sum_k \mu_k \frac{\lambda_1^{\alpha_k} + \lambda_2^{\alpha_k} + \lambda_3^{\alpha_k} - 3}{\alpha_k} \tag{42}$$

avec

μ_k, α_k constantes propres au matériau

Le tenseur de Finger *B* ou tenseur de Cauchy-Green gauche est le tenseur des déformations locales des aires (équation 43). *B* s'exprime en fonction des principaux coefficients d'extension λ_i.

$$B = \breve{F}\breve{F}^t \tag{43}$$

avec

$\breve{F}$ gradient des déformations locales

La densité d'énergie de déformation *W* pour l'expression de Rivlin ou de Ogden est donc un polynôme basé sur les coefficients d'extension principaux λ_i et des constantes à déterminer.

De manière générale, plus le modèle choisi pour la densité d'énergie de déformation *W* possède un grand nombre de degrés de libertés, c'est-à-dire un grand nombre de coefficients, plus il est facile de faire corréler les courbes analytiques avec les relevés expérimentaux. Pour les élastomères diélectriques étudiés, un modèle d'ordre inférieur ou égal à trois est suffisant pour modéliser correctement les variations mécaniques d'un polymère **[SAA 2003]**.

Remarque : *Les modèles dérivant de Rivlin les plus utilisés sont les modèles :*

- *Néo-Hookéen (Rivlin à 1 terme)*
- *Mooney-Rivlin (Rivlin à 2 termes)*
- *Yeoh (Rivlin à 3 termes sans le second invariant)*

En ce qui concerne la viscoélasticité, il existe une multitude de modèles pour prendre en compte le phénomène : viscoélasticité linéaire du type Maxwell généralisé, viscoélasticité grandes déformations linéaire (Simo, Holzapfel) ou non **[SAA 2003]**. Les modèles viscoélastiques grandes déformations ne sont pas simples à utiliser, à l'opposé des modèles viscoélastiques linéaires qui se contentent de l'ajout d'un noyau de relaxation type série de Prony.

Ainsi, au vu des modèles viscoélastiques possibles **[SAA 2003]** et des études réalisées **[YHA 2005] [WIS 2007]**, un modèle quasi-linéaire en grandes déformations est choisi. Ce modèle stipule que les constantes liées au phénomène de relaxation ne sont pas fonction du seuil d'étirement imposé au matériau. Dans ce modèle, les coefficients constants $\breve{C}_{ij}^0$ de l'énergie de déformation en hyperélasticité sont remplacés par des coefficients fonctions du temps $\breve{C}_{ij}^R$ (équation 44) faisant apparaître un noyau de relaxation (exponentielle décroissante).

$$\breve{C}_{ij}^R = \breve{C}_{ij}^0 [1 - \sum_{k=1}^{n} g_k (1 - e^{-\frac{t}{t_k}})] \tag{44}$$

avec

n indice ajusté pour obtenir la meilleure corrélation théorie/expérience
g_k et t_k coefficients propres au comportement temporel du matériau.

Grâce aux équations 38 à 44, la loi de comportement du matériau peut être développée et les constantes identifiées. Ces constantes sont déterminées expérimentalement mais elles correspondent

aux constantes propres du matériau et sont utilisables dans les écritures des lois mécaniques pour tout type de sollicitation.
Il est important de souligner qu'en hyperélasticité et en viscoélasticité, les coefficients caractéristiques du comportement mécanique sont fonction de la vitesse de déformation ($\dot{\lambda}$ en s^{-1}) imposée au polymère. Plus la vitesse de déformation est importante, moins les effets de relaxation ont le temps de se mettre en place et plus le modèle viscoélastique tend vers un modèle purement hyperélastique.

2.4.1.3 Essais mécaniques et loi de comportement

Au vu des modèles hyperélastiques et viscoélastiques énoncés au paragraphe 2.5.1.2, deux types d'expériences sont nécessaires pour caractériser le matériau :

- en traction uniaxiale pour obtenir les courbes de contraintes en fonction de la déformée. On choisit l'énergie de déformation *W* qui permet la meilleure corrélation entre le modèle et les données expérimentales. Cette corrélation nous fournit les coefficients constants $\breve{C}_{ij}^{0}$.
- en relaxation, ce qui nous permet de déterminer coefficients g_k et t_k

Le polymère 3M VHB 4910 travaille à volume constant, ce qui se traduit sur le troisième invariant par la loi 45.

$$I_3 = \lambda_1 \lambda_2 \lambda_3 = 1 \tag{45}$$

La loi 45 permet de relier entre eux les coefficients d'extensions principaux λ_i. Pour un essai de traction uniaxiale selon l'axe 1, avec un matériau travaillant à volume constant, le tenseur des déformations principales est alors donné par l'équation 46.

$$\begin{pmatrix} \lambda_1 & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_2 & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_3 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \lambda & 0 & 0 \\ 0 & \dfrac{1}{\sqrt{\lambda}} & 0 \\ 0 & 0 & \dfrac{1}{\sqrt{\lambda}} \end{pmatrix} \tag{46}$$

Trois formes de l'énergie de déformation sont choisies : Yeoh à trois coefficients, Mooney-Rivlin à deux coefficients et Ogden à deux coefficients (équation 47).

$$\begin{aligned} W_{yeoh} &= \breve{C}_{10}(I_1 - 3) + \breve{C}_{20}(I_1 - 3)^2 + \breve{C}_{30}(I_1 - 3)^3 \\ W_{money} &= \breve{C}_{10}(I_1 - 3) + \breve{C}_{20}(I_2 - 3) \\ W_{ogden} &= \frac{\mu_1}{\alpha_1}(\lambda_1^{\alpha_1} + \lambda_2^{\alpha_1} + \lambda_3^{\alpha_1}) \end{aligned} \tag{47}$$

avec

I_1 et I_2 premier et second invariant du tenseur de Finger B (équation 48).

$$\begin{aligned} I_1 &= \lambda_1^2 + \lambda_2^2 + \lambda_3^2 = \lambda^2 + \frac{2}{\lambda} \\ I_2 &= \frac{1}{\lambda_1^2} + \frac{1}{\lambda_2^2} + \frac{1}{\lambda_3^2} = \frac{1}{\lambda^2} + 2\lambda \end{aligned} \tag{48}$$

Pour chacune des trois formes de l'énergie de déformation *W*, la contrainte nominale selon l'axe 1 (celui de la traction) est exprimée en fonction du coefficient de déformation selon le même axe ($\lambda_1 = \lambda$).

$$\sigma_{1,yeoh} = 2(\lambda - \frac{1}{\lambda^2})[\breve{C}_{10} + 2\breve{C}_{20}(\lambda^2 + \frac{2}{\lambda} - 3) + 3\breve{C}_{30}(\lambda^2 + \frac{2}{\lambda} - 3)^2]$$

$$\sigma_{1,money} = 6\breve{C}_{10}(\lambda^2 - \frac{1}{\lambda^4}) + 6\breve{C}_{20}(1 - \frac{1}{\lambda^6}) \tag{49}$$

$$\sigma_{1,ogden} = \frac{\mu_1}{\alpha_1}[(3\alpha_1 - 2)\lambda^{2(\alpha_1 - 1)} - (3\alpha_1 - 2)\frac{1}{\lambda^{\alpha_1 + 2}}]$$

Ces lois analytiques décrivent le comportement du matériau en traction uniaxiale. Grâce à la toolbox « Curve fitting » sous Matlab, les coefficients inconnus de chacune de ces trois lois seront déterminés pour coller au plus près aux mesures expérimentales que nous allons réaliser.

En ce qui concerne les essais de relaxation, ils sont mis en corrélation avec la loi 50 qui exprime les variations de contraintes avec le temps.

$$\sigma(t) = \sigma_\infty + \sum_{i=1}^{N} \sigma_i \exp(-\frac{t}{\tau_i}) \tag{50}$$

avec

$\sigma_\infty, \sigma_i, \tau_i$ coefficients inconnus à corréler

L'équation 50 est indépendante du seuil de déformée imposé : modèle viscoélastique quasi linéaire.
Les coefficients g_k et t_k sont alors obtenus par l'égalité terme à terme entre deux expressions du noyau de relaxation (équation 51).

$$\sum_{i=1}^{N} \frac{\sigma_i}{\sigma_\infty} \exp(-\frac{t}{\tau_i}) = \frac{\sum_{k=1}^{N} g_k \exp(-\frac{t}{t_k})}{1 - \sum_{k=1}^{N} g_k} \tag{51}$$

Grâce aux équations 50 et 51 et aux mesures, les constantes g_k et t_k peuvent être identifiées en utilisant aussi la toolbox « Curve fitting » sous Matlab.

2.4.2 Protocole de mesure et matériels

2.4.2.1 Traction uniaxiale par vidéo-extensomètre

Plusieurs publications caractérisent mécaniquement le polymère 3M VHB 4910. Mais toutes ces caractérisations sont faites, soit par des extensomètres grandes déformations **[WIS 2007]**, soit par des mesures indirectes **[PLA 2006]**. Ces deux principes ne sont pas fiables. Le premier est une mesure par contact et perturbe le comportement du matériau. Le second est une mesure indirecte (déformée transverse) et ne prend pas en compte le glissement possible entre le matériau et les mors de la machine de traction.

En conséquence, nous allons mettre en place des essais en traction uniaxiale sans contact par vidéo-extensomètre. Le détail de ce protocole de mesure est donné en annexe 2.

2.4.2.2 Test en relaxation

Pour un essai en relaxation, une déformée (300%, 400%) est imposée à l'échantillon avec une vitesse de sollicitation rapide $0{,}34s^{-1}$. Puis, cette déformation est maintenue constante, et la force est mesurée via le capteur de force sur une plage de temps de 1000s.

2.4.2.3 Test en température

Les échantillons à tester sont disposés entre les mors de la machine de traction, à l'intérieur de l'enceinte thermique. La température de l'enceinte thermique est ensuite imposée (60°C, 80°C, 100°C) et on attend au moins 10min afin que le polymère atteigne la température de l'enceinte thermique. Un essai en traction unixiale ou en relaxation peut ensuite être réalisé avec le même protocole de mesure qu'au paragraphe 2.4.2.1 à 2.4.2.3.

2.4.3 Résultats et discussions

2.4.3.1 Essai en traction uniaxiale pour le polymère 3M VHB 4910

Pour chacune de ces deux vitesses de sollicitation ($0{,}34s^{-1}$ et $0{,}13s^{-1}$), cinq échantillons de même dimensions ont été testés, et les mesures présentent une très bonne reproductibilité. Ces mesures sont comparées à celles effectuées par Plante (figure 2.5), mesures constituant l'état de l'art initial **[PLA 2006]**.

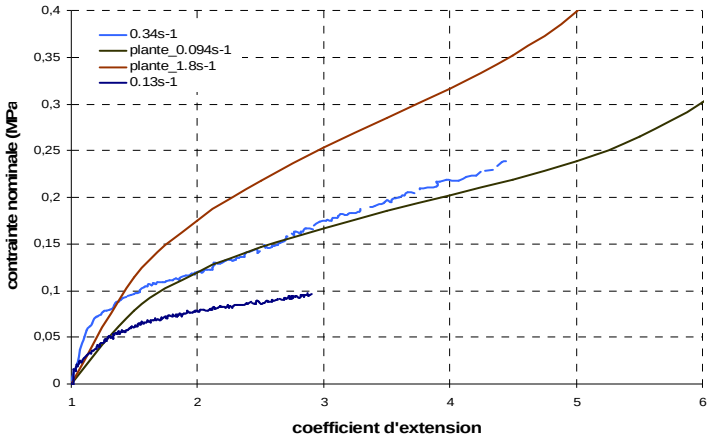


Figure 2.5 : Loi de comportement du matériau 3M VHB 4910 pour différentes vitesses de sollicitation

Lors de ces essais, le polymère est déformé jusqu'à 550%. Aucun seuil élastique ou rupture mécanique n'est noté sur les courbes ce qui justifie la partie hyperélastique du modèle mis en place. Au vu des courbes de la figure 2.5, le polymère 3M VHB 4910 a un comportement élastomère (caoutchoutique).

Les lois de comportement tracées peuvent être approximées par une relation linéaire pour des déformations inférieures à 10% soit un coefficient d'extension de 1.1. Le module de Young associé est de 0.825MPa, valeurs du même ordre de grandeur que celles avancées dans l'état de l'art (1-2MPa) **[KOR 2000]**. Mais, ce module n'est valable que sur une plage très restreinte.
Sur la figure 2.5, pour un échantillon de même dimension, si on diminue la vitesse de sollicitation, la contrainte mesurée pour une déformation donnée chute. En effet, plus la vitesse de sollicitation chute plus le polymère a le temps de se relaxer et plus les effets viscoélastiques interviennent. Ceci se traduit, pour une déformée donnée, par un rapprochement de la contrainte mesuré à la contrainte plateau après relaxation. A l'inverse, plus le polymère est sollicité rapidement et moins il a le temps de se relaxer donc plus son comportement se rapproche d'un comportement hyperélastique pur. Dans ce cas, pour une déformée donnée, la valeur de la contrainte mesurée tend vers la valeur de la contrainte instantanée.

Les courbes de comportement mesurées ont sensiblement l'allure des courbes théoriques relevées par Plante sur la figure 2.5. Toutefois, nos échantillons n'ont pas du tout la même géométrie. Notre échantillon possède une longueur 5 fois supérieure à la largeur, ce qui nous permet d'affirmer être en traction uniaxiale pure (annexe 2). Plante utilise des échantillons carrés, il n'est donc pas à priori dans une traction uniaxiale mais dans une déformation principale composée, ce qui peut justifier des valeurs de contraintes plus importantes.

A partir de la courbe à $0.34s^{-1}$ de la figure 2.5, les paramètres de la loi de comportement du polymère pour cette vitesse de sollicitation peuvent être déterminés. La figure 2.6 trace les corrélations entre expériences (bleu marine) et théorie pour les modèles de Money-Rivlin (rouge), Yeoh (rose) et Ogden (bleu ciel). Le tableau 2.4 donne les valeurs des coefficients hyperélastiques et le degré de la corrélation.

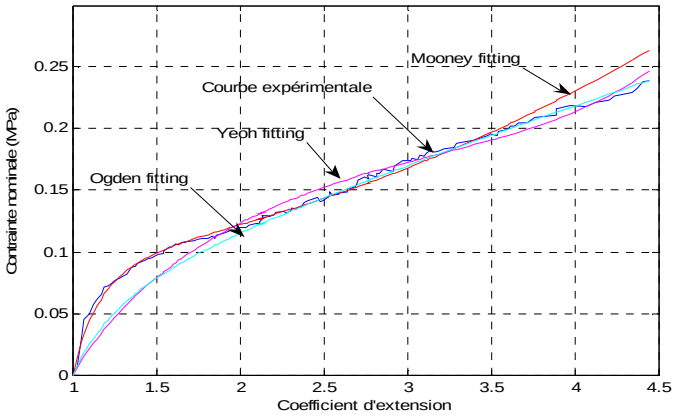


Figure 2.6 : Corrélation entre courbes expérimentales et théoriques

		Mooney-Rivlin	Yeoh	Ogden
$\breve{C}_{10}$	**MPa**	0,001479	0,03832	
$\breve{C}_{20}$	**MPa**	0,01474	-0,0008424	
$\breve{C}_{30}$	**MPa**		0,00002112	
μ_1				0,04209
α_1				1,426
SSE		0,002011	0,01745	0,002053
R-square		0,993	0,939	0,9928

Tableau 2.4 : Constantes pour les trois corrélations

Au regard du tableau 2.4, les énergies de Mooney-Rivlin et Ogden permettent d'obtenir une meilleure corrélation que l'énergie de type Yeoh, entre les données expérimentales et la loi de comportement analytique du polymère : coefficient SSE le plus proche de zéro, coefficient R-square le plus proche de 1. Toutefois, sur la figure 2.6, la courbe analytique obtenue à partir d'une énergie de Mooney suit mieux le comportement du polymère et ceci dès les faibles déformations.

<u>Conclusion :</u> On adopte une loi de comportement de type Mooney-Rivlin pour la partie hyperélastique. La démarche a été présentée pour un essai avec une vitesse de sollicitation de $0,34s^{-1}$. Cette démarche est identique pour tout essai à vitesses de sollicitation différentes et donne de bon résultat, bonne corrélation quelque soit la vitesse de sollicitation.

2.4.3.2 Essai en traction uniaxiale pour le polymère 3M VHB 4905

Le matériau 3M VHB 4905 possède les mêmes propriétés mécaniques que le matériau 3M VHB 4910 mais pour une épaisseur plus faible (0.5mm au lieu de 1mm). Cette affirmation mérite vérification. En

effet, généralement entre le même matériau fin et épais, les propriétés électriques et mécaniques varient. C'est par exemple le cas du PZT en couche mince et en couche épaisse.

Des essais de traction uniaxiale sur cinq échantillons de rapport longueur/largeur de 5 et pour deux vitesses de sollicitation $0.34s^{-1}$ et $0.13s^{-1}$ (figure 2.7) nous permettent de vérifier cette affirmation.

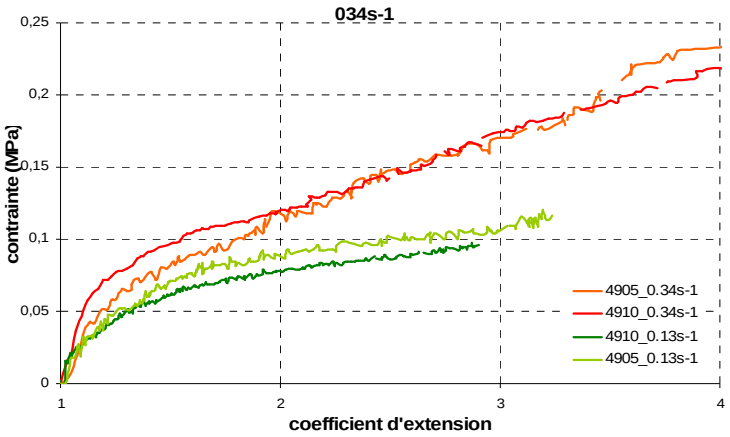


Figure 2.7 : Loi de comportement des polymères 3M VHB 4905 et 4910 à $0.34s^{-1}$et $0.13s^{-1}$

Sur la figure 2.7, on note des différences de comportement entre le polymère 3M VHB 4910 et le polymère 3M VHB 4905 pour les deux vitesses de sollicitation testées. L'allure des courbes est identique mais les valeurs diffèrent un peu pour de faibles coefficients d'extension et une grande vitesse de sollicitation ou, pour de fort coefficient d'extension et une faible vitesse de sollicitation.. Toutefois ces écarts sont relativement faibles et restent inférieurs à 14%.

<u>Conclusion :</u> Le comportement mécanique du polymère 3M VHB 4910 et celui du polymère 3M VHB 4905 seront considérés comme identiques dans la suite de nos travaux.

2.4.3.3 Essais de relaxation

Les essais ont été réalisés sur des échantillons de forme rectangulaire 100x20mm² (essai A à D) et sur des échantillons de forme carré 20x20mm² (essai E à F), pour une déformation initiale de 500% (essai A, B, E, F) et de 200% (essai C, D, G, H). La figure 2.8 relate les courbes mesurées.

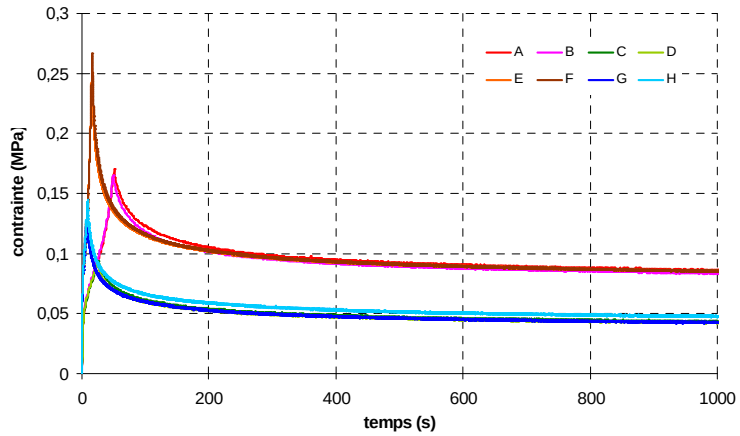


Figure 2.8 : Courbes en relaxation pour les 8 essais réalisés

La relaxation du polymère est de type exponentielle. Le seuil de contrainte après relaxation est atteint au bout de 300s ce qui caractérise un mode de relaxation assez lent. Au sein de la famille des

polymères, le temps de relaxation peut varier de quelques micros secondes à quelques centaines de milliers de seconde (thermoplastique rigide) et est fonction de la température.

Sur la figure 2.8, plus la déformée imposée est importante, plus la valeur de la contrainte instantanée est importante et naturellement plus la valeur du seuil après relaxation est important. On note aussi que la forme de l'échantillon n'influe pas sur la valeur de contrainte après relaxation. En effet, des échantillons carrés ou rectangulaires donnent la même valeur de contrainte après relaxation.

Grâce aux équations 50 et 51 et aux mesures, les constantes g_k et t_k sont identifiées. Le tableau 2.5 présente les résultats obtenus pour les essais de relaxation E et H. Les corrélations ont été effectuées sur tous les essais réalisées (figure 2.8) et donne des résultats similaires au cas présenté dans le tableau 2.5.

		Essai E	**Essai H**
$\mathbf{g_1}$	-	0,22786	0,5588
$\mathbf{t_1}$	s	0,3173	0,1071
$\mathbf{g_2}$	-	0,64259	0,09881
$\mathbf{t_2}$	s	5,88	0,3817
$\mathbf{g_3}$	-	0,052952	0,01644
$\mathbf{t_3}$	s	39,85	24,5
$\mathbf{g_4}$	-	0,021485	0,09349
$\mathbf{t_4}$	s	306,2	240,5

Tableau 2.5 : Paramètres temporels obtenus avec les fittings sur les essais de relaxation

Au vu du tableau 2.5, le polymère est sujet à deux constantes de relaxation rapides (t_1 et t_2) et deux constantes de relaxation lentes (t_3 et t_4).
Pour les corrélations présentés au sein du tableau 2.5, les valeurs des constantes calculées sont du même ordre de grandeur alors que les essais E et H ont une déformation initiale différente. Toutefois, les valeurs des coefficients g_k et t_k ne sont pas rigoureusement identiques pour les essais E et H. L'hypothèse de quasi-linéarité n'est pas parfaitement vérifiée, mais largement suffisante pour notre modélisation.

<u>Conclusion :</u> Le polymère est sujet à une relaxation rapide (<1s) et à une relaxation lente (>10s). Les constantes de la colonne de droite du tableau 2.5 se rapprochent des valeurs publiées dans la littérature [WIS 2007]. Ce qui semble normal vu que nous avons le même environnement de tests. Toutefois, avec les constantes de la colonne de gauche du tableau 2.5 l'allure des courbes analytiques utilisant ces constantes, collent mieux aux courbes expérimentales. Elles seront donc utilisées dans la modélisation analytique développée dans le chapitre 3.

2.4.3.4 Effet de la température sur les propriétés mécaniques du polymère

Le matériau 3M VHB 4910 étant un élastomère, son comportement caoutchoutique n'est valide que sur une plage de température au delà de laquelle il devient trop dur (vitreux) ou trop mou (visqueux). Une analyse de la variation du module de Young en fonction de la température permet donc de limiter la plage de fonctionnement du polymère. Le module de Young équivalent est estimé pour des températures de 20°C, 60°C, 80°C et 100°C par un essai en traction uniaxiale (figure 2.9). Comme nous ne pouvons réaliser de mesures pour des températures inférieures à la température ambiante, nos mesures sont complétées par celles de Zhang en basse température **[ZHA 2004]**.

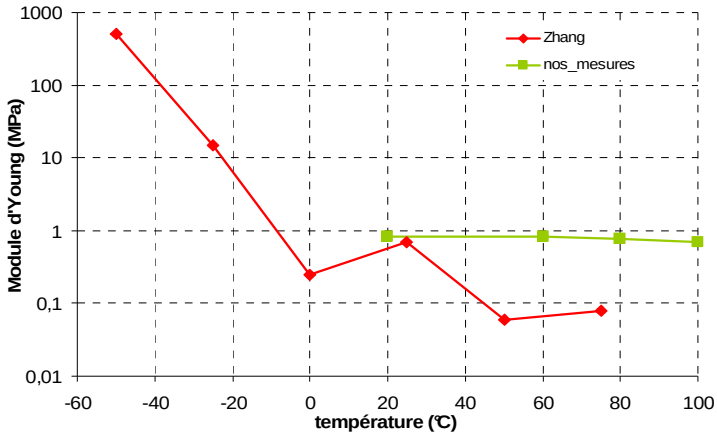


Figure 2.9 : Variation du coefficient d'extension en fonction de la température

Sur la figure 2.9, le module de Young augmente fortement avec la chute en température. Le polymère devient rigide, « vitreux ». La transition vitreuse s'opère sur une large plage de température. A -40°C, le module de Young vaut 100 fois le module de Young à température ambiante. Cette température sera prise comme température de transition vitreuse du matériau, et est en accord avec la littérature qui stipule une température de transition vitreuse entre -70°C et -40°C **[CHO 2005]**.

Au dessus de la température ambiante, le module de Young est quasi-stable et vaut 0.825MPa. Dans la plage de température 20°C/100°C, le module de Young passe de 0.825MPa à 20°C à 0.69MPa à 100°C soit une chute relative de 16%. Cette chute n'étant pas significative contrairement aux mesures de Zhang, le plateau caoutchoutique s'étend au moins jusqu'à 100°C.

Au-delà de 100°C, les mesures sont difficiles et non exploitables car le polymère devient de plus en plus mou et entre lentement dans son état visqueux. A 130°C, le polymère brunit et entame sa destruction. Nous savons que la transition autour de la température de fusion est large et vu que la température de détérioration est de 130°C, une chute significative du modèle de Young aurait du être notée dans la plage haute de nos mesures (80-100°C). Ce n'est pas le cas. Aucune amorce de fusion (fusion des cristallites) n'est relevée, le polymère n'est donc pas semi cristallin mais bien amorphe comme le suggérait sa quasi transparence.

De plus, les essais de traction uniaxiale réalisés sont nécessaires pour déterminer la loi de comportement mécanique du matériau en température. La figure 2.10 trace l'évolution de la contrainte nominale transverse (déplacement des mors) en fonction du coefficient d'extension pour différentes températures et pour une vitesse de sollicitation de $0.34s^{-1}$.

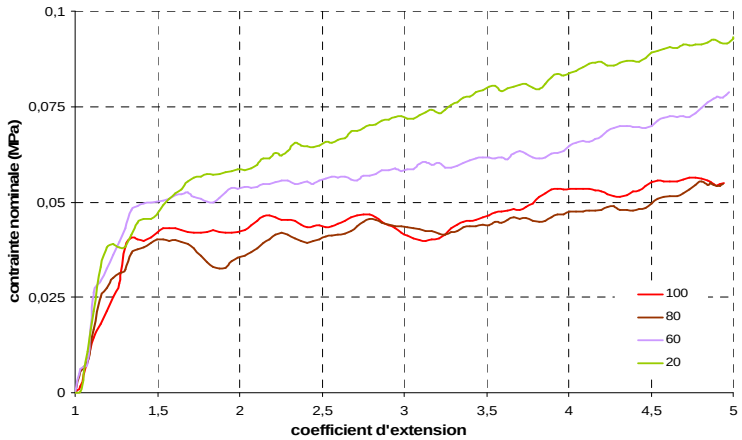


Figure 2.10 : Effet de la température sur la loi de comportement mécanique

Sur la figure 2.10, plus la température augmente et plus le polymère devient « mou ». Ceci se traduit par une contrainte nominale plus faible pour un même niveau d'étirement.

Pour des températures supérieures à 80°C, le polymère est trop mou et aucune mesure correcte n'est possible avec le dispositif que nous utilisons actuellement. En effet, la courbe pour une température de 100°C vient s'entremêler avec la courbe pour une température de 80°C, sûrement parce que nous avons atteint la limite de sensibilité du capteur de force. Pour de si hautes températures, il faudrait un capteur de force de meilleure sensibilité ou résolution. Toutefois, les courbes à 60°C et 80°C permettent d'affirmer que le comportement mécanique du polymère est dépendant de la température.

<u>Conclusion :</u> Le polymère 3M VHB 4910 est un polymère amorphe transparent qui peut être utilisé dans la plage de température -40°C/100°C, assurant un état caoutchoutique du matériau soit le comportement élastomère escompté. Cette plage englobe la plage de température d'utilisation donnée par le fabriquant (-35°C/90°C). Pour chaque température une loi en comportement mécanique peut donc être écrite. Et ceci à partir de l'énergie de déformation de type Mooney et les mesures réalisées en suivant la démarche du paragraphe 2.4.3.1.

2.4.3.5 Effet de la précontrainte sur le comportement du polymère

Dans de nombreuses applications développées, le polymère 3M VHB 4910 est précontraint pour obtenir un polymère plus fin aux meilleures propriétés électromécaniques. Toutefois, le comportement du polymère précontraint est souvent pris identique à celui du polymère sans précontraint. Cette hypothèse serait valide si le polymère se relaxait entièrement. Ce qui n'est pas le cas avec le polymère 3M VHB 4910 utilisé (paragraphe 2.4.3.3). Une caractérisation de l'effet de la précontrainte sur les propriétés mécaniques du polymère est donc nécessaire et sera utile pour le modèle analytique mis en place au chapitre 3. La figure 2.11 trace la loi de comportement pour des essais sans et avec précontrainte-relaxation.

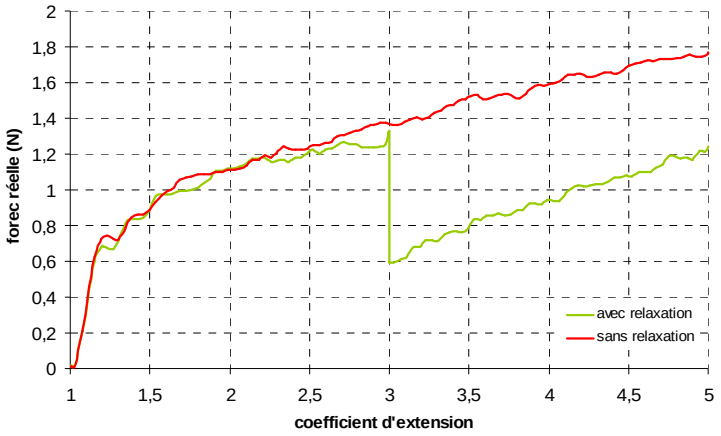


Figure 2.11 : Traction uniaxiale polymère précontraint et non précontraint

Dans un essai avec relaxation, le polymère est étiré de 400% (coefficient d'extension de 3). Cette déformation est maintenue constante et le polymère se relaxe pendant 300s. Puis, le polymère est de nouveau étiré. Après relaxation, la courbe de comportement du polymère précontraint a le même profil que celle du polymère non précontraint mais décalée vers les valeurs inférieures. Ce comportement est en accord avec une étude antérieure **[CHO 2005]**. La loi de comportement du polymère précontraint est la même que le polymère non précontraint, mais diminué de la valeur de la précontrainte. Ce constat est crucial pour le modèle analytique.

<u>Conclusion :</u> Pour une vitesse de sollicitation et une température données, il suffit de connaître la loi de comportement du polymère non précontraint pour en déduire la loi de comportement d'un polymère précontraint et ceci quelle que soit la valeur de la précontrainte imposée.

2.4.3.6 L'hystérésis

Le polymère 3M VHB 4910 est un matériau viscoélastique et doit à ce titre présenter un cycle d'hystérésis directement lié aux pertes mécaniques au sein du polymère. Dans l'expérience suivante, le polymère est au repos, on l'étire de 475% (coefficient d'extension de 3.75) puis on le contraint jusqu'à son état initial, sous une vitesse de sollicitation de $0.34s^{-1}$. La figure 2.11 montre l'évolution transverse de la loi de comportement pour trois cycles.

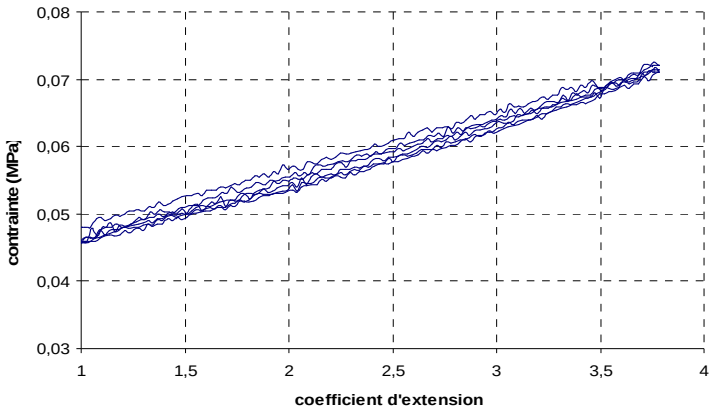


Figure 2.11 : Cycle d'hystérésis pour le polymère 3M VHB 4910

La figure 2.11 montre un cycle d'hystérésis très étroit pour le polymère 3M VHB 4910. Nous avons vérifié que cette hystérésis présente pour tous les échantillons testés varie en fonction de la vitesse de sollicitation imposée au polymère, et n'est pas imputable à une erreur de mesure. Les pertes viscoélastiques liées à cette hystérésis mécanique sont ainsi très faibles et n'induirons à priori que peu d'échauffement au sein du polymère.

<u>Conclusion :</u> On peut considérer que sous des vitesses de sollicitations moyennes (autour $0.5s^{-1}$), le chemin contrainte/coefficient d'extension est le « même » en étirement ou en compression pour le polymère 3M VHB 4910.

<u>Remarque :</u> Pour une vitesse de sollicitation trop grande, les relaxations rapides n'auront pas le temps de se réaliser et limiterons la réponse du polymère. Ainsi, le cycle d'hystérésis va s'élargir.

2.4.3.7 La plasticité

Pour une déformation mécanique maximale, il existe un seuil plastique. En d'autre terme, le polymère est étiré au maximum puis relâché, mais il ne revient pas tout à fait à ses dimensions d'origine : écart relatif de 10 à 20%.
Ce phénomène plastique est faible et n'opère que sous certaines conditions par exemple il faut que le matériau soit non précontraint et subisse une déformation d'au moins 500%. Le polymère ne sera pas utilisé dans ce cas de déformation pour des raisons de tension de polarisation trop haute (voir paragraphe 3.3 « résultats théoriques »).

<u>Conclusion :</u> La plasticité n'est pas prise en compte au sein du modèle mis en place, parce qu'elle est négligeable pour notre application. Une amélioration possible du modèle développé au chapitre 3 est la prise en compte de ce phénomène de plasticité.

2.5.4 Conclusion des essais mécaniques

Nous avons mis en place un protocole de mesure sans contact qui nous assure une bonne connaissance du comportement mécanique du polymère 3M VHB 4910. Cette démarche est adaptable à tout type de polymères pour toutes valeurs de vitesse de sollicitation.

A température ambiante, le comportement du polymère se traduit par une loi avec une énergie de déformation de type Mooney à deux coefficients et des constantes de relaxation reportées dans le tableau 2.6.

		Mooney-Rivlin
$\tilde{C}_{10}$	**MPa**	0,001479
$\tilde{C}_{20}$	**MPa**	0,01474
$\mathbf{g_1}$	**-**	0,22786
$\mathbf{t_1}$	**s**	0,3173
$\mathbf{g_2}$	**-**	0,64259
$\mathbf{t_2}$	**s**	5,88
$\mathbf{g_3}$	**-**	0,052952
$\mathbf{t_3}$	**s**	39,85
$\mathbf{g_4}$	**-**	0,021485
$\mathbf{t_4}$	**s**	306,2

Tableau 2.6 : Constantes de la loi de comportement mécanique du polymère 3M VHB à température ambiante et vitesses de sollicitation de 0.34s^{-1}

Ces constantes ont été obtenues par un essai en traction uniaxiale, mais correspondent aux constantes propres du matériau et peuvent à ce titre être utilisées même si le polymère n'est pas sollicité en traction uniaxiale. Ceci est une hypothèse forte mais vérifiée expérimentalement par une série de tests en déformation biaxiale (chapitre 3).
De plus, au cours de ces essais, les effets de la température et de la précontrainte sur le comportement du polymère ont été testés et caractérisés. En effet, plus la température est élevée et plus le polymère devient « mou » donc plus son module deYoung équivalent chute. L'étude de l'effet de la précontrainte sur le comportement mécanique du polymère est indispensable à caractériser pour la fiabilité du modèle analytique mis en jeu.

2.5 Caractérisation électrique du polymère 3M VHB 4910

L'objectif de ce sous chapitre est de caractériser le comportement électrique du polymère, de connaître les variations des constantes électriques en fonction des paramètres extérieurs, constantes nécessaires pour mettre en place un modèle analytique fiable.

Ce sous chapitre se divise en deux grandes parties : la caractérisation du polymère seul et la caractérisation de la structure finale. La première partie permet de déterminer les phénomènes physiques liés au polymère, et la seconde partie permet d'identifier l'influence des électrodes en graisse.

2.5.1 Schéma électrique équivalent du polymère diélectrique

Le polymère diélectrique 3M VHB 4910 peut être électriquement représenté par une capacité variable C_p en parallèle avec une résistance R_p, comme représenté sur la figure 2.12, et une résistance de surface des électrodes représentée par la résistance R_e.

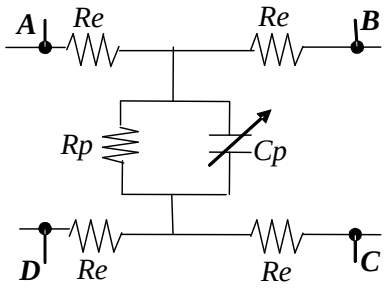


Fig.2.12: Modèle électrique du polymère diélectrique

Comme précisé au paragraphe 2.2.4, les paramètres électriques les plus importants sont la permittivité relative ε_r (capacité variable), le facteur de perte ε'' (pertes diélectriques), la résistance R_p (pertes par conduction) et la résistance de surface R_e (pertes liées au courant de fuite surfacique). Tous ces paramètres sont fonction de la température, de la fréquence, du type d'électrode et de la précontrainte imposée au matériau.

On note que plusieurs études ont été réalisées pour caractériser le comportement électrique du polymère 3M VHB 4910. Toutefois, aucune de ces caractérisations n'est complète dans le sens qu'elles n'étudient pas l'influence de tous les paramètres (température, fréquence, précontrainte, effet de l'électrode) dans les mêmes conditions de tests. De plus, les résultats de certaines études sont contradictoires **[CHO 2005] [WIS 2007]** et beaucoup n'étudient pas le comportement du polymère à très basses fréquences (0,1Hz). Comme nous souhaitons développer une application récupératrice d'énergie novatrice qui fonctionne en quasi-statique et en dynamique (<100Hz), le comportement du polymère en très basse fréquence doit être parfaitement connu.

2.5.2 Protocole de mesure et matériels

Les échantillons sont composés du polymère diélectrique (3M VHB 4910 ou 3M VHB 4905) pris en sandwich entre deux électrodes. Trois types d'électrodes sont testés : des électrodes en or déposé par évaporation, des électrodes en graisse conductrice d'argent (Circuit Work 7100) déposée manuellement et des électrodes en scotch conducteur en cuivre marouflé sur le polymère.

<u>Remarque :</u> L'or est un matériau très conducteur, et généralement utilisé comme électrode pour caractériser le comportement de nombreux matériaux. Ainsi, les mesures réalisées avec ces électrodes seront considérées comme valeur de référence.

L'échantillon est rond avec un diamètre de 16mm ou 25mm et une épaisseur variable fonction du matériau choisi et de la précontrainte imposée.

Pour chaque échantillon, une analyse diélectrique est réalisée avec un spectromètre diélectrique Novocontrol. Le protocole expérimental de mesure est détaillé en annexe 3.

<u>Remarque :</u> Pour chaque caractérisation présentée, plusieurs séries d'échantillons ont été réalisées et testées dans les mêmes conditions afin d'obtenir une reproductibilité de la mesure. Par soucis de clarté, seule une mesure sera présentée à chaque fois.

2.5.3 Résultats et discussion sur le comportement du polymère

Le scotch 3M VHB 4910 est un polymère polyacrylate dont la formule chimique n'est pas connue. Toutefois, un polymère polyacrylate est une combinaison de monomère d'esther (figure 2.13) faisant partie de la famille des vinyles.

$$R - C - O - R'$$

Figure 2.13 : Schématique d'un esther

Ainsi, le diélectrique 3M VHB 4910 est un polymère isotrope, amorphe (paragraphe 2.4.3.5) avec une longue chaîne carbonée et une chaîne courte portant un oxygène en double liaison. Seules des analyses chimiques nous permettraient de connaître correctement la formule de ce polymère, mais ce n'est pas notre objectif. Cette étude se focalise sur les propriétés électriques du polymère 3M VHB 4910, dont la connaissance est nécessaire pour la mise en place du modèle analytique du chapitre 3.

La figure 2.14 trace l'évolution de la permittivité pour différentes températures (de -40°C à 100°C) avec des électrodes en or. La courbe obtenue pour une température XX°C est notée XX sur la figure 2.14.

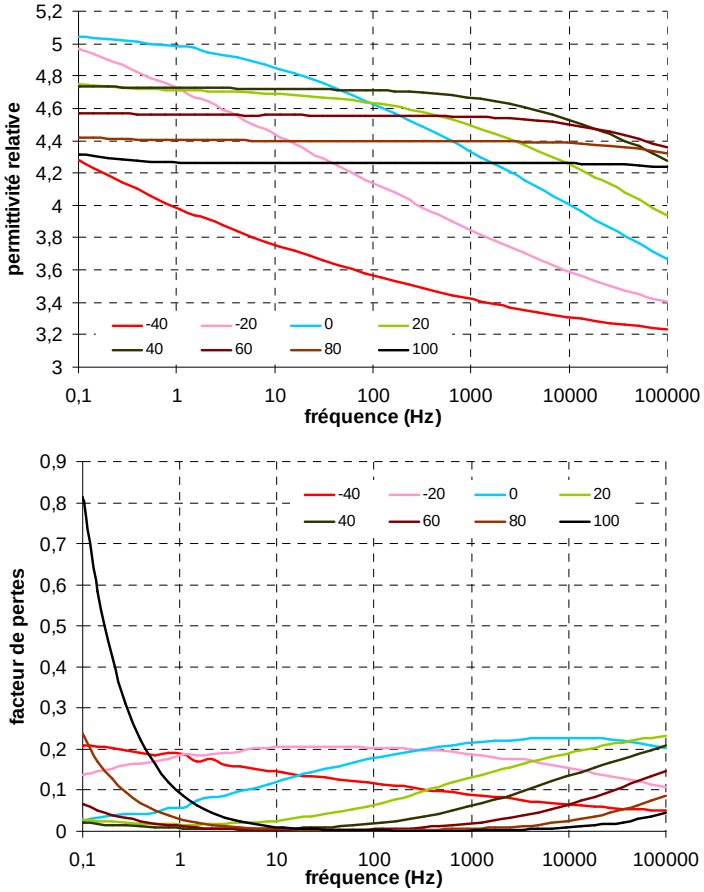


Figure 2.14: Permittivité relative et facteur de pertes du polymère 3M VHB 4910

Sur la figure 2.14, à température ambiante (20°C), la permittivité relative du polymère est quasi constante aux faibles fréquences et vaut 4.7-4.75. Cette valeur bien connue a été mesurée et identifiée à plusieurs reprises, et est la plus souvent utilisé dans les modèles **[PLA 2006] [WIS 2007]**. L'erreur relative sur les paramètres calculés, à partir des mesures effectuées, est estimé par l'appareil de mesure et vaut 3%. Cette faible valeur permet de valider ces essais.

<u>Conclusion :</u> A température ambiante (20°C) et basse fréquence (<100Hz), la permittivité relative du polymère 3M VHB 4910 est de 4.7, valeur la plus utilisée par la communauté scientifique.

2.5.2.1 Détermination des relaxations au sein du polymère

Sur la figure 2.14, à température ambiante, pour des fréquences supérieures à 100Hz, la permittivité réelle chute avec l'augmentation en fréquence : de 4.75 à 0.1Hz à 3.9 à 0.1MHz. Ce phénomène bien connu est associé à une relaxation au sein du polymère.

Il existe différentes relaxations au sein d'un polymère associées aux différentes polarisations que ce dernier peut subir : polarisation électronique, ionique, d'orientation et interfaciale. La figure 2.15 relate les différentes polarisations au sein d'un matériau.

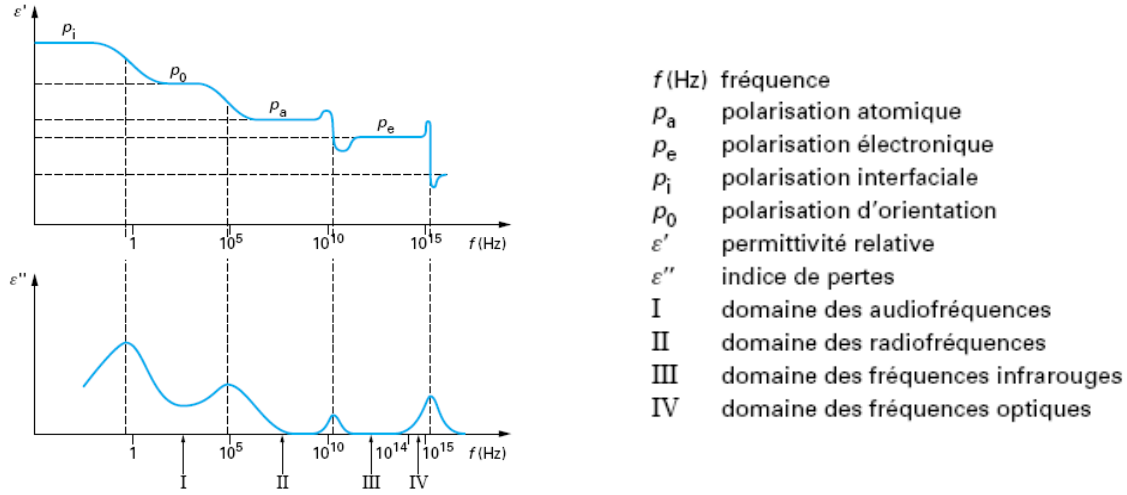


Figure 2.15 : Polarisation au sein d'un matériau diélectrique [DUB]

Les polarisations ionique et électronique sont liées à la création de dipôles induits sous l'action d'un champ électrique : déplacement du barycentre entre charges positives et négatives. Ces phénomènes sont très rapides (~1THz).

A l'inverse, certaines molécules ou chaînes possèdent un moment dipolaire électrique permanent. En l'absence de champ électrique, les dipôles permanents microscopiques sont orientés de façon aléatoire et la polarisation macroscopique résultante est nulle. Mais, sous l'action d'un champ électrique, ces dipôles s'orientent dans la direction du champ et la polarisation résultante est non nulle. Ce phénomène est beaucoup plus lent que les deux premiers (figure 2.16).

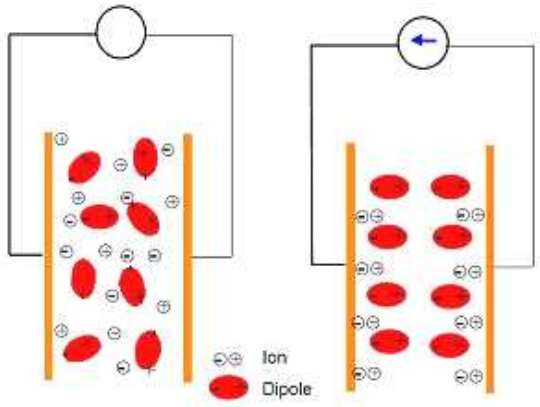


Figure 2.16 : Polarisation ionique et d'orientation

Les effets des polarisations apparaissent donc en fonction de la fréquence de fonctionnement. Aux basses fréquences, toutes les polarisations contribuent aux valeurs des constantes électriques et aux

hautes fréquences seules les polarisations ioniques et électroniques interviennent. A chaque phénomène de polarisation est associée une ou plusieurs relaxations se traduisant par un pic sur le facteur de pertes et une augmentation de la permittivité relative ε_r (figure 2.15).

<u>Conclusion :</u> Sur notre plage de mesure (basse fréquence), le polymère 3M VHB 4910 est soumis à une polarisation d'orientation qui s'ajoute à la polarisation électronique opérée en grandes fréquences.

Pour un polymère, la polarisation d'orientation engendre une ou plusieurs relaxations généralement notées α, β, γ fonction de la température Θ de l'échantillon (figure 2.17).

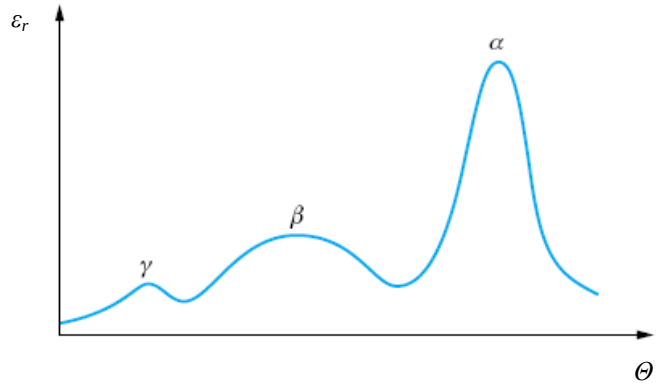


Figure 2.17 : Trois types de polarisation d'orientation [DUB]

La relaxation α est dite principale et est liée à la température de transition vitreuse du polymère (passage d'un état vitreux à un état caoutchoutique). Les relaxations β et γ sont secondaires et sont dues aux mouvements de segments polaires plus ou moins longs des chaînes principales ou secondaires, ou aux mouvements de rotation de groupements (alkyl…).
Les trois types de relaxation évoquées (α, β, γ) ont chacune une dépendance particulière à la température qui se traduit par une loi analytique spécifique servant à l'identifier.

Sur la figure 2.14, pour le polymère 3M VHB 4910, à température ambiante, la fréquence de relaxation est proche de 0.1MHz. La valeur de cette fréquence augmente avec la température : si l'échantillon est chauffé les courbes de permittivité relative et facteur de pertes se décalent vers les hautes fréquences. Ainsi, avec nos mesures, la courbe de fréquence de relaxation f_{relax} en fonction de la température Θ suit une loi d'Arrhénius (équation 52) caractéristique d'une β-relaxation.

$$f_{relax} = f_{relax,0} e^{-\frac{E_A}{k_b \Theta}} \tag{52}$$

avec

E_A énergie d'activation (kJ.mol^{-1})
k_b constante de Boltzmann

<u>Conclusion :</u> Sur notre plage de mesure, le polymère 3M VHB 4910 est sujet à une β-relaxation qui opère sur une large plage de fréquences (6 décades). Cette relaxation, associée aux mouvements des chaînes secondaires courtes au sein du polymère, est sûrement due aux mouvements de la chaîne oxygénée [SOM 2002]. Cette relaxation contribue aux valeurs des constantes électriques.

2.5.2.2 Détermination des lois analytiques

Sur la figure 2.14, aux faibles températures (-40°C), la permittivité relative ε_r augmente linéairement à mesure que la fréquence diminue : c'est l'action de la β-relaxation. A l'inverse, aux hautes

températures (100°C), la permittivité relative est quasi constante sur toute la plage de fréquence : plateau supérieur constant obtenu après la β-relaxation. Une fois établi, la valeur de ce plateau est fonction de la température (figure 2.14) La figure 2.18 trace l'évolution de la permittivité relative en fonction de la température aux très basses fréquences c'est-à-dire lorsque la permittivité est quasi constante.

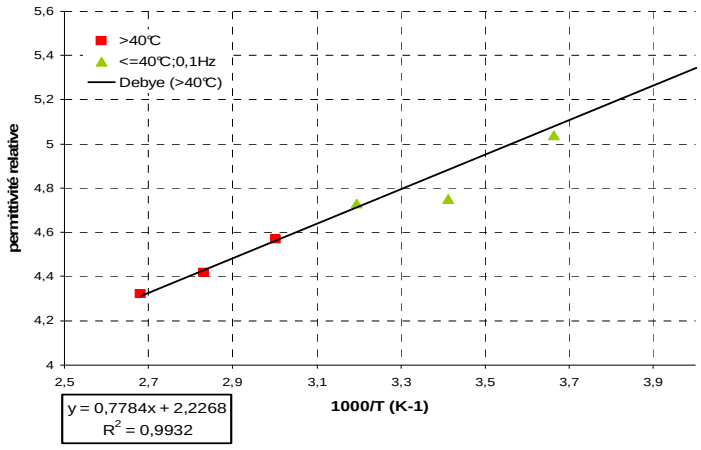


Figure 2.18 : Permittivité relative en fonction de la température à très basse fréquence

Pour des températures supérieures à 40°C, la valeur de la permittivité relative est relevé à 0.1Hz. Une corrélation linéaire est opérée sur ces mesures. Pour des températures inférieures ou égales à 40°C, la valeur de la permittivité relative est aussi relevée à 0.1Hz, même si le plateau constant est juste atteint.

Au vu de la figure 2.18, la variation de la permittivité relative en fonction de la température est trop grande pour être imputée aux seuls phénomènes de dilatation thermique. En effet, le coefficient de dilation du matériau est très faible ($1.8\ 10^{-4}$°C).

Le phénomène observé est lié au fait que les dipôles se sont orientés, et est très bien décrit par le modèle de Debye (équation 53) **[GON 2003]**.

$$\varepsilon_r = \varepsilon_\infty + \frac{N\mu^2}{3\varepsilon_0 k_b \Theta} \tag{53}$$

avec

ε_∞ permittivité relative à très haute fréquence
ε_0 permittivité du vide
N densité de dipôle
μ moment dipolaire
k_b constante de Boltzmann
Θ température

Dans l'équation 53, ε_∞ est la contribution des dipôles induits (polarisation électronique) et $\frac{N\mu^2}{3\varepsilon_0 k_b \Theta}$ est la contribution de la polarisation d'orientation.

Sur la figure 2.18, la loi de Debye approxime bien les mesures avec une erreur relative inférieure à 2%. La valeur de la constante diélectrique aux très hautes fréquences est estimée à 2.23.

Toutefois, le modèle de Debye est valide dans le cas de matériau à faible densité de dipôle car il ne prend pas en compte l'interaction dipôle-dipôle. Cette hypothèse est valide si l'énergie d'interaction

dipôle-dipôle e_{dip} (équation 54) est plus faible que l'énergie de fluctuation thermique e_{th} (équation 55) qui assure au dipôle un changement de direction aléatoire avec le temps.

$$e_{dip} = \frac{N\mu^2}{4\pi\varepsilon_0} \tag{54}$$

$$e_{th} = \frac{k_b\Theta}{q} = 25.8meV \tag{55}$$

avec

q charge d'un électron

Notons que pour prendre en compte l'énergie d'interaction dipôle-dipôle, il existe des modèles type Clausius-Mosotti (équation 56) ou Kirkwood-Frôhlich (équation 57)

$$\frac{3(\varepsilon'-\varepsilon_\infty)}{(\varepsilon'+2)(\varepsilon_\infty+2)} = \frac{N\mu^2}{9\varepsilon_0 k_b\Theta} \tag{56}$$

$$\frac{(\varepsilon'-\varepsilon_\infty)(2\varepsilon'+\varepsilon_\infty)}{\varepsilon'(\varepsilon_\infty+2)^2} = \frac{\varsigma N\mu^2}{9\varepsilon_0 k_b\Theta} \tag{57}$$

avec

ς coefficient de corrélation de Kirkwood (~1).

A partir des équations 55 à 57, l'énergie d'interaction est calculée (tableau 2.7).

		Debye	Clausius	Kirkwood
$N\mu^2$	eV	1,78E-13	5,38E-13	7,00E-13
e_{dip}	meV	1,6	4,8	6,3
e_{th}/e_{dip}		16,125	5,375	4,09

Tableau 2.7 : Energie d'interaction calculée pour les trois modèles

D'après les résultats regroupés au sein du tableau 2.7, l'énergie d'interaction dipôle-dipôle peut être négligée dans le cas d'un modèle de Debye. Toutefois, avec les deux autres modèles, ce n'est pas le cas. Il existe donc bien une énergie d'interaction dipôle-dipôle qui est sensiblement 5 fois plus faible que l'énergie de fluctuation thermique mais qui contribue aux valeurs des constantes électriques.

Mais, l'important est de déterminer une loi analytique simple qui puisse prédire la variation de permittivité relative en fonction de la température aux faibles fréquences : la loi de Debye mise en place a une erreur relative inférieure à 2% et sera donc prise comme loi de référence pour ce matériau.

<u>Conclusion :</u> Un modèle de Debye est satisfaisant pour décrire et prédire les variations de la permittivité relative en fonction de la température pour le polymère 3M VHB 4910 aux faibles fréquences (<1Hz).

2.5.2.3 Détermination de la conductivité directe

La conductivité directe est la mesure de la conductivité du matériau sous tension continue. Cette mesure nous renseigne sur le comportement du matériau en statique ou quasi statique. Lors d'essais électriques en fréquence, la conductivité directe est souvent visualisée à très basses fréquences : conductivité constante avec la fréquence, et augmentation du facteur de pertes sous permittivité relative constante.

Sur les courbes de la figure 2.14, pour les hautes températures (100°C), le facteur de pertes augmente aux basses fréquences (0,1Hz) alors que la permittivité relative demeure constante : conductivité directe au sein du polymère. La conductivité directe pour le polymère 3M VHB 4910 à 100°C vaut $4.52\ 10^{-14} S.cm^{-1}$ (plage haute des isolants).

2.5.3.4 Conclusion

Dans notre plage de mesure, la β-relaxation est le phénomène le plus important en tant que relaxation volumique au sein du polymère et influe nettement sur les valeurs des paramètres électriques. En basses fréquences, une loi de Debye permet de bien décrire l'évolution de la permittivité relative en fonction de la température. La conductivité directe influe seulement sur les pertes aux basses fréquences et hautes températures. Ces trois phénomènes, β-relaxation, loi de Debye et conductivité directe, permettent de bien expliquer et anticiper les évolutions des paramètres électriques.

2.5.3 Résultats et discussions pour l'application finale

2.5.3.1 Effet du type d'électrode sur les constantes électriques

L'électrode choisie pour l'application est une électrode à base de graisse d'argent conductrice (Circuit Work 7100). Elle est déposée sur la face supérieure du polymère, l'électrode inférieure étant composée d'un scotch conducteur. L'annexe 4 explique et valide le choix de la configuration de test.

Trois types d'électrodes sont testés : une en or, une en graisse conductrice d'argent et une en scotch conducteur. Un dernier échantillon avec le polymère 3M VHB 4905 et des électrodes en scotch conducteur en cuivre est réalisé et testé. La figure 2.21 trace la permittivité de ces échantillons à température ambiante (20°C).

Sur la figure 2.21, la permittivité relative et le facteur de pertes des polymères 3M VHB 4910 et 3M VHB 4905 ont la même allure et les mêmes valeurs expérimentales. Seule l'épaisseur change donc entre ces deux polymères.

Nous remarquons que chacun des trois autres échantillons a un comportement particulier. En effet, avec les électrodes en scotch conducteur, la permittivité relative est constante pour des fréquences inférieures à 100Hz alors qu'avec les électrodes en or une légère augmentation de la permittivité relative apparaît pour ces mêmes fréquences. De plus, avec les électrodes en scotch, le facteur de pertes augmente aux hautes fréquences (10kHz) et très basses fréquences (0,1Hz), en comparaison avec les électrodes en or. Cette augmentation peut s'expliquer par un léger phénomène de polarisation des électrodes.

Les valeurs obtenues pour les électrodes en graisse sont nettement plus important que pour les autres électrodes. Trois hypothèses peuvent expliquer ce phénomène : la graisse conductrice possède une permittivité réelle propre, une polarisation de surface ou polarisation interfaciale apparaît à l'interface entre le polymère et la graisse, ou la graisse épouse mieux le relief du polymère.

Les essais en température nous permettront de trouver la justification la plus probable de ce phénomène.

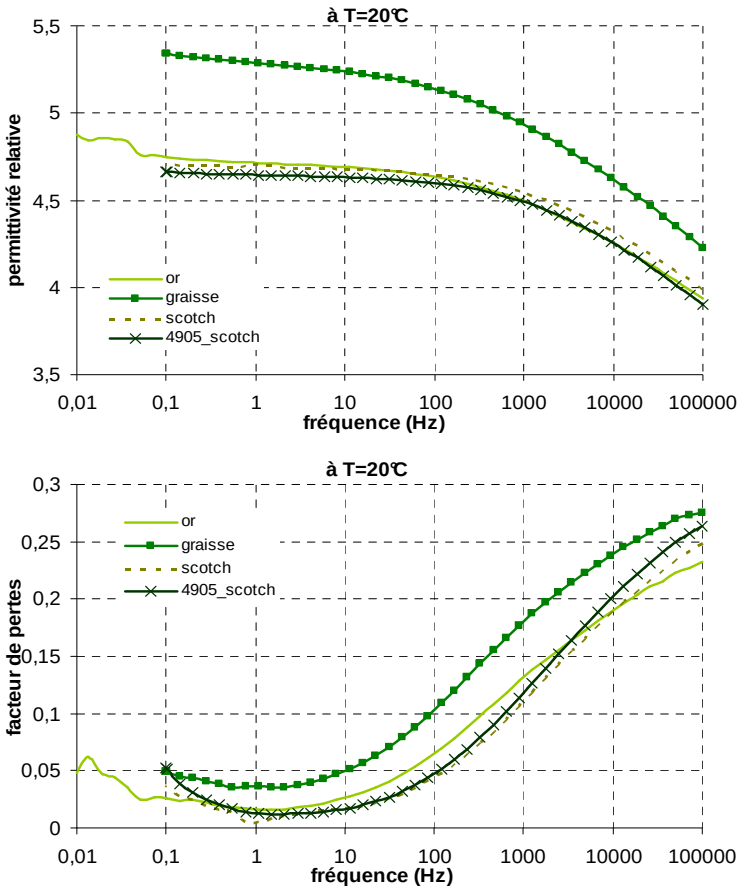


Figure 2.21: Effet du type d'électrode sur la permittivité du polymère

<u>Conclusion :</u> Les polymères 3M VHB 4910 et 4905 ont le même comportement électrique. Le comportement électrique est quasi identique pour des électrodes souples (or) et des électrodes rigides (scotch). Toutefois, des électrodes rigides engendrent des pertes supplémentaires aux très faibles et très hautes fréquences de notre plage de mesure. Des électrodes en graisse semblent introduire une polarisation supplémentaire ce qui augmente les valeurs des constantes électriques.

2.5.3.2 Effet de la température sur les constantes électriques

a. Détermination des phénomènes physiques propres au polymère

Les propriétés électriques de la structure avec des électrodes en graisse sont mesurées en fonction de la fréquence pour un panel de températures (figure 2.22).

Comme avec les électrodes en or, les mêmes phénomènes physiques liés à la nature du polymère apparaissent : β-relaxation et conductivité directe. L'allure des courbes est sensiblement semblable. En effet, il n'y a pas de décalage en fréquence entre la configuration avec les électrodes en or et celle avec les électrodes en graisse. Seules les valeurs de permittivité sont plus importantes. Toutefois, pour des températures supérieures à 40°C et des fréquences inférieures à 10Hz, une augmentation de la permittivité est notée. Une mesure complémentaire de permittivité en très faible fréquences (<0.1Hz) nous informe que cette augmentation de permittivité relative s'effectue sur deux décades. Au vu de la figure 2.17, le processus opérant est une α-relaxation, lié à température de transition vitreuse du polymère.

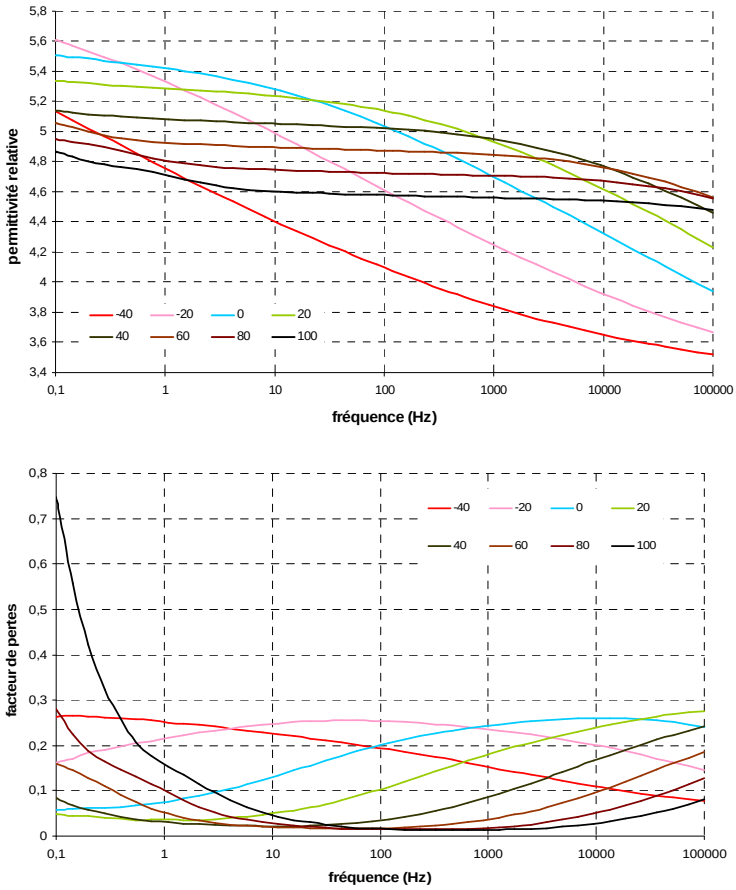


Figure 2.22: Permittivité relative et facteur de pertes pour l'application finale

A 20°C, la permittivité relative est quasi constante aux faibles fréquences et vaut 5.35, soit une augmentation relative de 12% par rapport à la permittivité de référence qui est de 4.7-4.75. Cette variation est notée pour toutes les températures avec sensiblement le même pourcentage d'augmentation.

Ainsi, pour les faibles fréquences, la permittivité relative est quasi constante. Une fois que le processus de β-relaxation est terminé et avant que celui de α-relaxation ne commence, la permittivité relative ne dépend que de la température. Comme au paragraphe 2.5.2.2, une loi de Debye décrit bien ces variations (figure 2.23).

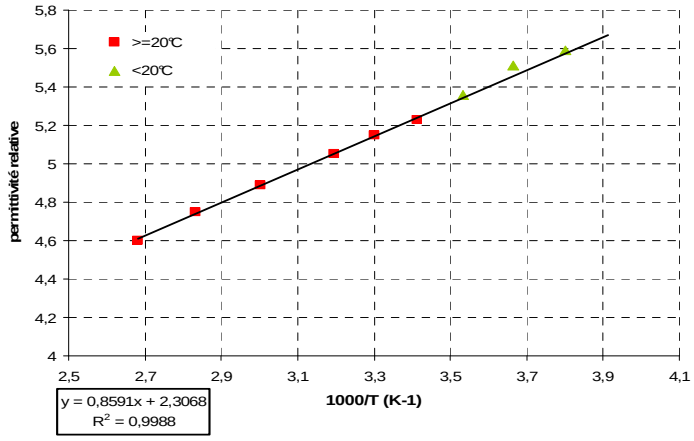


Figure 2.23 : Variation de la permittivité relative en fonction de la température

Sur la figure 2.23, la permittivité relative en haute fréquence est de 2.23, soit un écart relatif de 3.6% par rapport à la valeur de référence (figure 2.18). En hautes fréquences, seuls les phénomènes de polarisation électronique et ionique interviennent au sein du polymère, l'utilisation de la graisse ne peut induire de phénomène supplémentaire à de telles fréquences. Il est donc logique de ne pas noter d'augmentation de la permittivité infinie (ε_∞). Par contre, la pente de la courbe obtenue pour des électrodes en graisse est plus importante que celle pour des électrodes en or.

En ce qui concerne la conductivité directe, elle vaut 3.10^{-3}S.cm^{-1} à 0.1Hz pour une température de 100°C. A température ambiante, la valeur de la conductivité en quasi-statique est de 1.10^{-16}S.cm^{-1}. Ces valeurs sont inférieures à celles obtenues pour un échantillon avec des électrodes en or.

<u>Conclusion :</u> En isolant les phénomènes physiques liés à la nature du polymère (β-relaxation et conductivité directe), tous les nouveaux phénomènes relevés sont alors induits par l'utilisation de la graisse comme électrode. Une nouvelle polarisation semble intervenir s'ajoutant à la polarisation d'orientation ce qui augmente les valeurs des constantes électriques.

b. Détermination des phénomènes physiques introduit par l'électrode

Les permittivités relatives en fonction de la température en °C, pour les électrodes en graisse et en or, sont tracées figure 2.24.a pour différentes fréquences (notées « electrode_fréquence en Hz »). La force diélectrique $\Delta\varepsilon'$ est tracée sur la figure 2.24.b. Pour une température donnée, la force diélectrique $\Delta\varepsilon'$ est la différence entre la permittivité à très basse fréquence (plateau supérieur constant) et la permittivité à haute fréquence ε_∞.

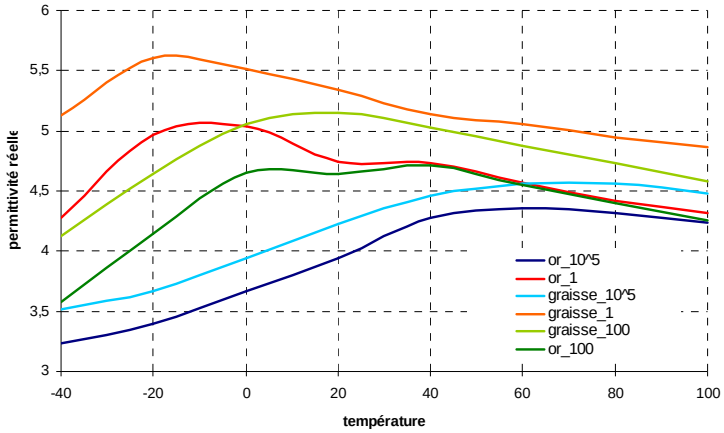


Figure 2.24.a : Comparaison entre électrode en or et en graisse au niveau de la permittivité

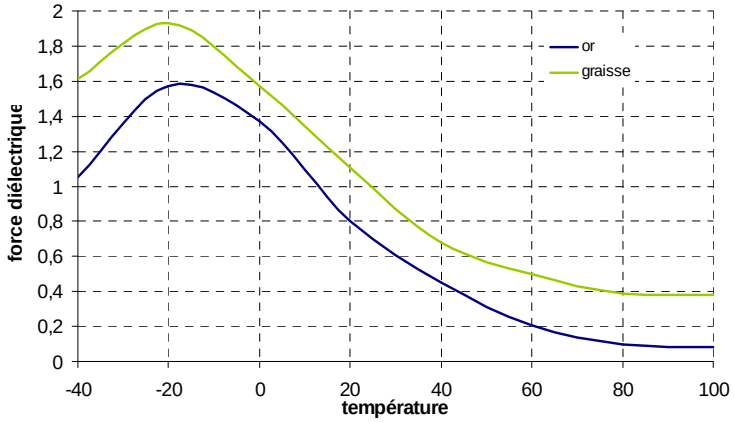


Figure 2.24.b: Comparaison entre électrode en or et en graisse au niveau de la permittivité

Sur la figure 2.24.a, pour une fréquence donnée, les courbes de permittivités relatives pour une électrode en or et pour une en graisse, ont la même allure mais avec des valeurs plus élevée pour une électrode en graisse. De plus, plus on diminue la fréquence et plus l'écart entre les deux courbes augmente : à 0.1MHz cet écart est de 0.25 et à 0.1Hz il est de 0.5. Cet écart augmente avec la diminution de la fréquence ce qui traduit l'apparition d'un nouveau phénomène aux basses fréquences.

Sur la figure 2.24.b, la force diélectrique pour des électrodes en graisse est supérieure à celle pour des électrodes en or, indiquant l'apparition d'une polarisation supplémentaire de la structure. Selon la figure 2.15, cette polarisation opérant aux faibles fréquences (<100Hz) ne peut être qu'une polarisation interfaciale. Elle se traduit par un piégeage de charge à l'interface entre le polymère et la graisse conductrice.

Cette polarisation est difficilement visualisable car sa contribution est somme toute assez faible en comparaison à la contribution de la polarisation d'orientation. De plus, la β-relaxation s'étale sur six décades et noie dans son évolution les variations du à la polarisation interfaciale.

Traditionnellement, la polarisation interfaciale est associée à des mouvements de charges au sein d'un matériau vers une interface et s'opère à très très faibles fréquences (<0.01Hz à 20°C par exemple). Pour le matériau testé, cette polarisation s'opère à des fréquences plus élevées et est sûrement dû à la migration de charges au sein de l'électrode en graisse conductrice vers le polymère diélectrique. Le résultat est le même : des charges sont piégées à l'interface polymère/graisse. Mais le mécanisme de migration peut être plus rapide au sein de la graisse qu'au sein du polymère, assurant ainsi des effets visibles de la polarisation interfaciale à des fréquences non conventionnelles.

<u>Conclusion :</u> Le polymère 3M VHB 4910 avec des électrodes en graisse est sujet à une β-relaxation mais aussi à une polarisation interfaciale intervenant aux faibles fréquences, ce qui augmente les valeurs des constantes électriques à ces fréquences là. A température ambiante (20°C) et faibles fréquences (<100Hz), la permittivité relative pour la structure avec des électrodes en graisse est de 5.35 soit une augmentation relative de 12% par rapport à la valeur avec des électrodes en or (4.7-4.75). Cette augmentation est notée pour toutes les températures testées et varie aléatoirement entre 9% et 16% selon la température.

c. Détermination des pertes électriques au sein de la structure

Estimer les pertes électriques en fonction de la température et de la fréquence est nécessaire à la construction d'un modèle analytique fiable. Les pertes électriques peuvent être de nature diélectrique (équation 58) ou de conduction au travers de la résistance volumique du matériau R_p.

$$P_D = \varepsilon_0 w \varepsilon'' E^2 = \varepsilon_0 w \varepsilon_r \tan(\delta) E^2 \tag{58}$$

avec

w pulsation
ε'' facteur de pertes

Au sein des polymères, les pertes par diffusion sont négligeables comparées aux pertes diélectriques et des pertes par conduction. Elles ne seront donc pas prises en compte dans la modélisation.

Pour calculer les pertes associées au polymère diélectrique, il faut connaître les variations de la résistance R_p et de $tan\ (\delta)$ en fonction de la température et de la fréquence (figure 2.26a et 2.26b).

Sur la figure 2.26, pour des températures comprises entre 0°C et 40°C, les pertes diélectriques sont minimales à faibles fréquences (<10Hz). Pour ces faibles fréquences, les pertes diélectriques augmentent avec la montée en température. Pour des températures négatives, les pertes diélectriques sont minimales pour des fréquences plus faibles et largement inférieures à 0.1Hz.

Les pertes par conduction sont liées aux variations de la résistance R_p. Pour une température donnée, la valeur de la résistance volumique R_p augmente à mesure que la fréquence diminue. Aux faibles fréquences, la valeur de la résistance volumique R_p augmente avec la température. Toutefois, sur la plage de mesure en température et fréquence, la résistance R_p est suffisamment grande pour que les pertes par conduction, dues au courant de fuite, restent faibles.

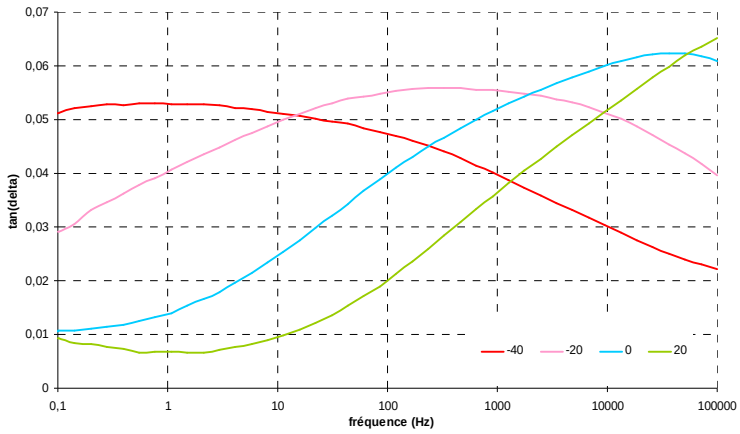


Figure 2.26.a: Variation de tan(δ) en fonction de la fréquence

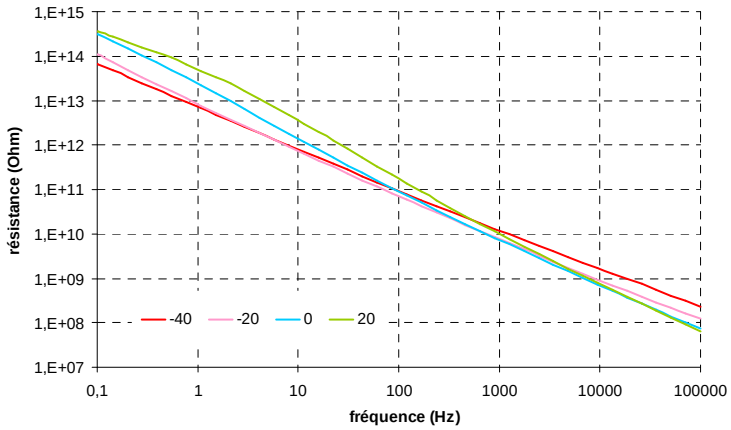


Figure 2.26.b: Variation de Rp en fonction de la fréquence

<u>Conclusion :</u> Connaissant l'évolution de ces deux paramètres, l'estimation des pertes électriques liées au polymère est réalisable dans toutes les situations (variation de la température et de la fréquence) et permet de déterminer des zones optimales pour la récupération d'énergie (meilleur rendement).

2.5.3.3 Influence de la précontrainte

De récentes études ont révélé un effet de la précontrainte sur la permittivité relative et le facteur de pertes du matériau mais avec des évolutions différentes. Pour certaines équipes, la permittivité relative décroît linéairement avec l'augmentation de la précontrainte du matériau **[WIS 2007]** alors que pour d'autres cette décroissante est de type parabolique **[CHO 2005]**. Ce phénomène est encore mal compris et semblent être fortement dépendant du protocole de mesure.

Pour chaque précontrainte surfacique, trois échantillons ont été testés. La figure 2.27 trace la dépendance de la permittivité relative à la précontrainte surfacique, pour une faible fréquence (0,1Hz).

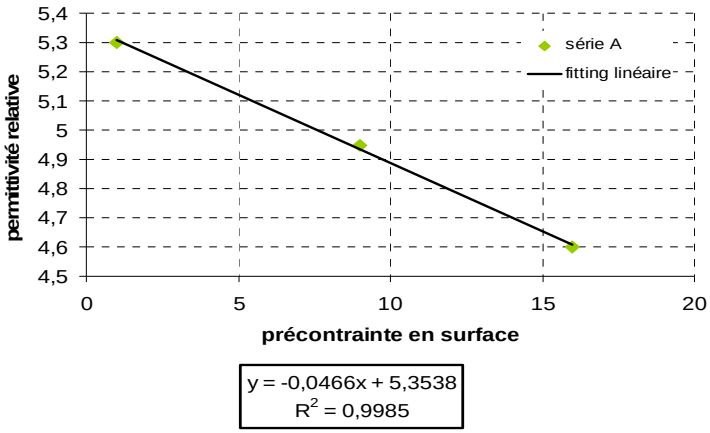


Figure 2.27: Variation de la permittivité relative en fonction de la précontrainte à fréquence faible

Au vu de la figure 2.27, la permittivité relative du polymère semble décroître linéairement quand on augmente la précontrainte imposée au matériau. Cette variation est en accord avec une partie des études antérieures **[WIS 2007]** et ne peut être attribuée à l'électrostriction. En effet, pour le polymère 3M VHB 4910, l'électrostriction a une contribution très faible par rapport à la contrainte de Maxwell ce qui nous a permis de négliger ce phénomène (paragraphe 2.1).

Ce phénomène de variation de la permittivité avec la précontrainte est observable au sein du caoutchouc naturel à température ambiante **[TOK 1999] [LIN 2004]**. En effet, le caoutchouc naturel est un polymère amorphe qui cristallise à température ambiante, lorsqu'il est soumis à une contrainte (figure 2.28).

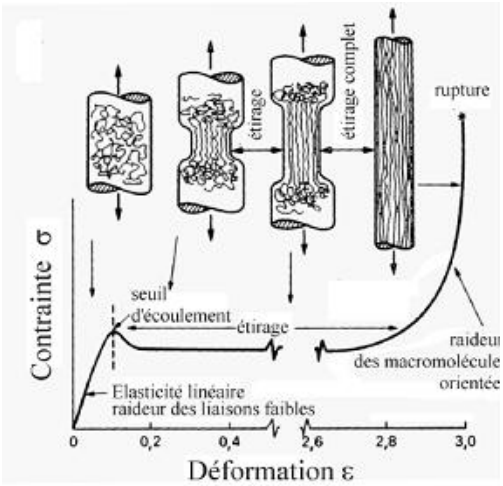


Figure 2.28 : Cristallisation du caoutchouc naturel avec l'étirage [ASH]

Cette cristallisation change la forme de la chaîne carbonée, ce qui modifie l'orientation des dipôles et l'interaction dipôle-dipôle. Au niveau macroscopique, cette réorganisation se traduit par une variation de la permittivité relative du caoutchouc. La figure 2.29 explique ce phénomène.

Sur la figure 2.29, T est la contrainte vraie imposée au polymère dans le plan et μ est la moyenne des moments dipolaires selon l'épaisseur. Plus on étire le polymère et plus le nombre de zones qui se cristallisent augmente. Les dipôles, contraints par les longues chaînes, se réorientent et ont moins de mobilité. Ils ont donc beaucoup plus de difficultés à s'orienter selon le champ électrique imposé. Ceci induit une diminution au niveau macroscopique de la moyenne des moments dipolaires soit, d'après la loi de Debye (équation 53), une diminution de la permittivité réelle.

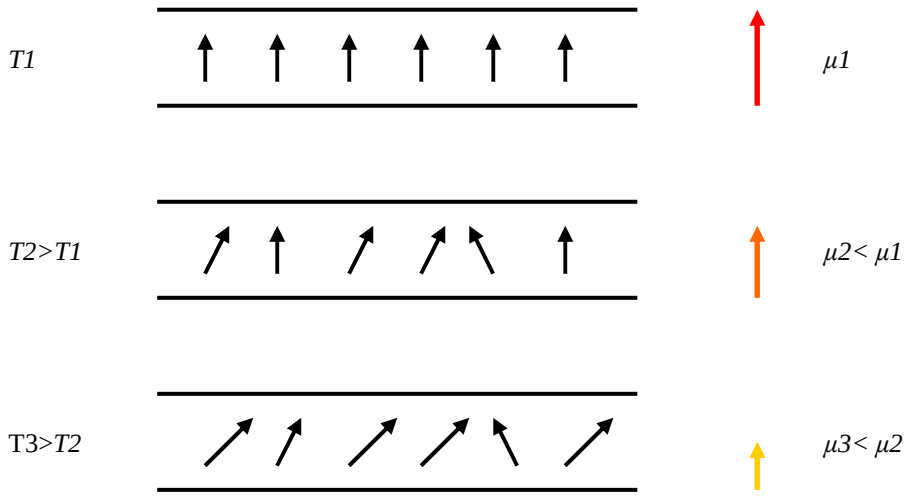


Figure 2.29 : Variation de l'orientation des dipôles en fonction de la contrainte imposée

Certains élastomères amorphes présentent le même comportement que le caoutchouc naturel, ils sont appelés élastomères à comportement caoutchoutique. Or, à température ambiante, le polymère 3M VHB 4910 est un élastomère amorphe (paragraphe 2.5.3.5). Nous émettons l'hypothèse que le polymère 3M VHB 4910 est un élastomère à comportement caoutchoutique.

Remarque : Une mesure de l'indice de réfraction du polymère en fonction de l'élongation nous permet de vérifier le taux de cristallisation du polymère en fonction de l'élongation. En effet, plus le polymère contient de cristallites et moins il est transparent. D'autres mesures telles une DSC (Differencial scanning calorimetry) ou une ATR (analyse thermogravimétrique) peuvent aussi nous renseigner sur la nature du polymère et son évolution en fonction de l'élongation imposée.

Conclusion : La permittivité relative du polymère 3M VHB 4910 décroît linéairement avec l'augmentation de la précontrainte imposée au matériau. Le polymère 3M VHB 4910 amorphe cristallise à température ambiante avec l'élongation qui lui est imposée. Une loi analytique issu d'une corrélation linéaire des mesures peut être écrite pour chaque température et peut être utilisée dans le modèle analytique pour estimer la permittivité d'un échantillon dont on ne connait que la précontrainte.

2.5.3.4 Effet de la précontrainte combinée à la température

Au sein d'une application, le polymère diélectrique 3M VHB 4910 peut être précontraint et travailler en température. Il est alors nécessaire d'évaluer si ces deux effets combinés font apparaître de nouveaux phénomènes au sein du polymère.

Les figures 2.30 et 2.31 montrent la variation de la permittivité en fonction de la fréquence, pour différentes températures. La figure 2.30 concerne un échantillon avec un coefficient d'extension surfacique λ_p^2 de 9, et la figure 2.31 avec un coefficient d'extension surfacique λ_p^2 de 16.

Pour les échantillons précontraints, on observe toujours les phénomènes liés à la nature du polymère : β-relaxation, α-relaxation et polarisation interfaciale.

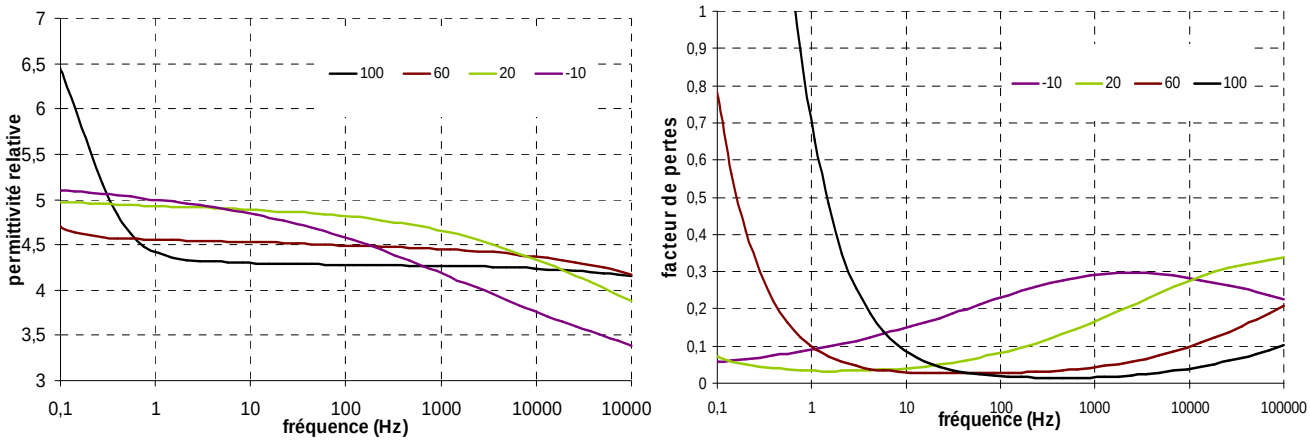


Figure 2.30 : Permittivité de l'échantillon précontraint en surface de 9 en fonction de la fréquence

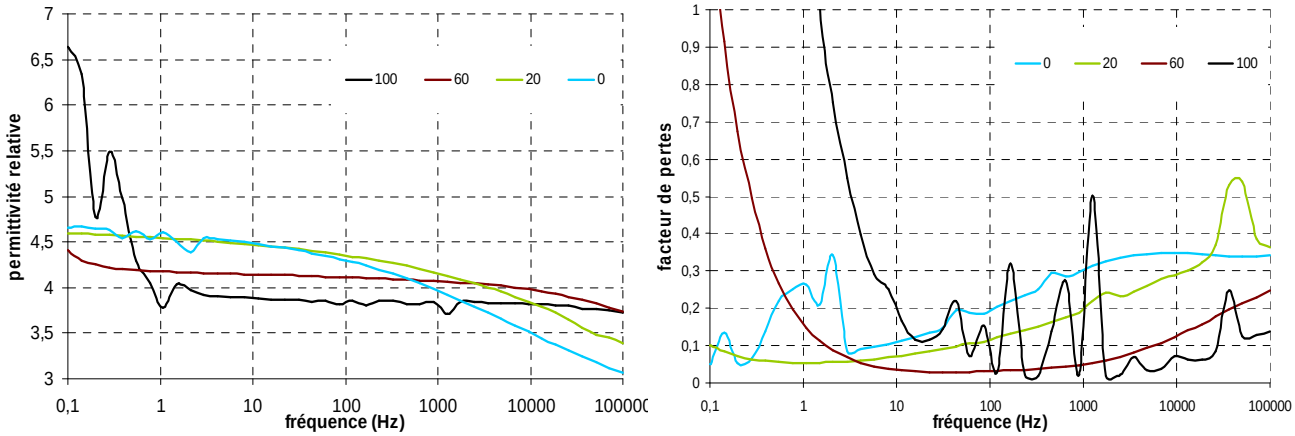


Figure 2.31: Permittivité de l'échantillon précontraint en surface de 16 en fonction de la fréquence

Toutefois, aux hautes températures (100°C) et faibles fréquences (0,1Hz), nous observons un phénomène de polarisation interfaciale supplémentaire. En effet, la permittivité réelle augmente brusquement à partir de 1Hz, alors que le facteur de pertes augmente brusquement à partir de 10Hz. Ce décalage en fréquence traduit une migration des charges au sein du matériau vers l'électrode. Or, une migration de charge au sein de l'électrode vers le matériau s'est déjà opérée. Ainsi, l'augmentation de la permittivité relative peut s'expliquer par un surplus de charges augmentant la valeur de la capacité ou par la création d'une structure de type capacité double couche (double layer capacitor).

On note enfin qu'avec le polymère précontraint (semi cristallin), l'α-relaxation est visible à partir de 60°C-80°C pour notre plage de fonctionnement. Ainsi, grâce aux correspondances temps/température, on peut estimer que la transition vitreuse s'opère vers -10°C pour un polymère au coefficient de prédéformation de 3, et vers 0°C pour un polymère au coefficient de prédéformation de 4. Pour une fréquence donnée, l'α-relaxation se décale donc vers les hautes températures en fonction du taux de cristallite présent dans le polymère **[RUN 2007]**.

<u>Conclusion :</u> La plage de fonctionnement d'un polymère précontraint est plus restreinte en température que celle d'un polymère sans précontrainte.

D'autre part, on relève aux hautes températures et faibles fréquences que plus l'échantillon est précontraint et plus les pertes diélectriques sont élevées (figure 2.32). Sur la figure 2.32, le polymère

précontraint avec un coefficient d'extension surfacique λ_p^2 de 9 est noté « p3 _température», celui avec un coefficient d'extension surfacique λ_p^2 de 16 est noté « p4 _température», le non précontraint est noté « température ».

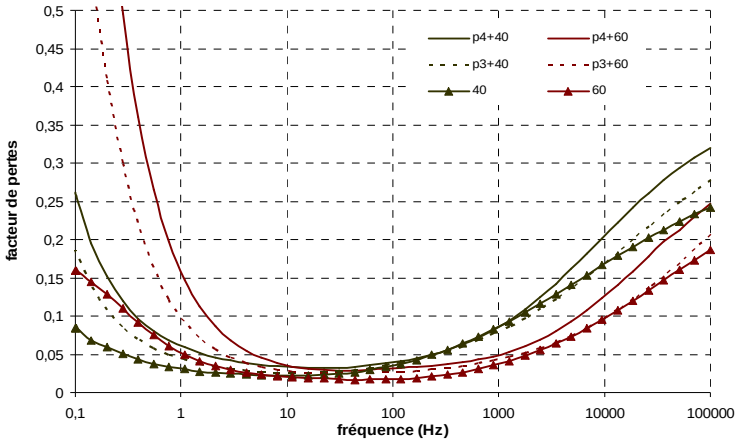


Figure 2.32 : Permittivité imaginaire pour échantillon précontraint et non précontraint

Pour des fréquences de 10 à 100Hz, que l'échantillon soit précontraint ou non, la permittivité imaginaire est minimale ce qui se traduit par des pertes diélectriques minimales. Même si les valeurs de permittivité imaginaire semblent proches, ces dernières varient du simple au double entre un échantillon non précontraint (ex : 0,0166 à 60°C) et un échantillon avec une précontrainte surfacique de 16 (ex : 0,029 à 60°C), ce qui induit des pertes diélectriques doubles avec l'échantillon précontraint à cette température. Mais, la variation la plus spectaculaire s'opère aux très faibles fréquences : la permittivité imaginaire varie de 0,159 à 60°C pour un échantillon non précontraint à 1,27 à 60°C pour un échantillon précontraint en surface de 16.

Conclusion : Aux faibles fréquences et hautes températures, les pertes diélectriques sont très importantes, le rendement du dispositif se retrouve donc amoindri, il se peut même que l'on ne récupère plus aucune énergie électrique. Cette constatation est un sérieux handicap pour le développement d'une application de récupération d'énergie et risque de diminuer le domaine de fonctionnement du dispositif.

2.5.3.5 Résistance de surface

La résistance de surface a été mesurée à température ambiante, sur tous les échantillons testés au paragraphe précédent. Ce paramètre varie avec la déformation active, c'est-à-dire lorsque l'on étire le polymère. En effet, la résistance surfacique vaut 1Ω au repos, 3Ω sous une déformée surfacique de 50% et 5Ω sous une déformée surfacique de 100%. Même si l'écart relatif entre ces valeurs de résistances est important, les valeurs en elle mêmes restent faibles comparées aux résistances surfaciques développées par d'autres types d'électrodes (tableau 2.3).

Sachant que le courant volumique qui traverse l'actionneur est faible, les pertes par conduction au travers de la résistance de surface R_e seront aussi très faibles. Par conséquence, nous n'avons pas jugé nécessaire de réaliser des mesures en température sur ce paramètre, vu sa faible influence sur les pertes par conduction.

Conclusion : La résistance surfacique augmente avec la déformation mais l'électrode garde toujours une bonne conductivité. L'influence de R_e sur les pertes par conduction est faible et peut être négligé.

2.5.3.6 Champ électrique de claquage

Le champ de claquage est mesuré sur des échantillons non précontraints et sur des échantillons précontraints pour le polymère 3M VHB 4910. Une haute tension est imposée à l'échantillon via un module de conversion DC/HDC. Cette tension est augmentée graduellement jusqu'à ce que le matériau subisse un claquage diélectrique. Le tableau 2.8 récapitule les valeurs expérimentales moyennes mesurées sur plusieurs échantillons.

		λ_p=1	λ_p=3	λ_p=4
Tension de claquage	**V**	10000	6000	5000

Tableau 2.8 : Tension et champ électrique de claquage pour le polymère 3M VHB 4910

Les tensions de claquage sont très élevées, ce qui est en accord avec les publications faisant état d'un actionnement des polymères diélectriques sous hauts champs électriques **[PEL 2001] [KOF 2003] [PLA 2006] [WIS 2007]**.

<u>Conclusion :</u> Les tensions et champs électriques au sein de la structure peuvent être très importants ce qui induit une grande zone de fonctionnement pour le générateur et une possible densité d'énergie récupérable importante.

2.5.4. Conclusion sur la caractérisation électrique

Dans la littérature, il est possible de trouver des mesures partielles : certaines équipes ont étudié l'influence de la température, d'autres l'influence de la précontrainte. Mais, la réalisation des échantillons, le protocole de mesure et en particulier l'imprécision de mesure varient entre ces travaux, ce qui exclut la réalisation d'un modèle analytique fiable basé sur ces mesures. Les caractérisations présentées dans ce sous chapitre sont les premières mesures complètes sur le polymère 3M VHB 4910, en effet tous les paramètres influents ont été testés avec le même protocole de mesure.

La caractérisation du polymère avec des électrodes en or nous permet de déterminer quels phénomènes physiques sont liés au polymère en l'occurrence la β-relaxation et la conductivité directe, mais aussi quelles sont ses constantes propres. Pour la plage de fréquence qui nous intéresse (<100Hz), le polymère 3M VHB 4910 a une permittivité diélectrique de 4.7 à température ambiante. A cette température, son comportement sera optimal autour de 1Hz car les pertes électriques y sont minimales.

Les mesures réalisées sur le polymère 3M VHB 4910 avec les électrodes en graisse conductrice nous permettent de déterminer l'effet de cette électrode sur les constantes électriques du polymère : polarisation interfaciale. Aux faibles fréquences (<100Hz), avec des électrodes en graisse, les constantes électriques de la structure augmente de 15% par rapport aux valeurs avec des électrodes en or. Ce gain ne se traduit pas forcément par un gain sur l'énergie récupérée. En effet, la force électrostatique et les capacités mises en jeu sont plus importantes mais les pertes électriques sont aussi plus importantes. Pour obtenir un rendement de conversion maximal, il existe donc des zones optimales en températures et en fréquences.

Que les électrodes soient en or ou en graisse, les paramètres électriques de la structure varient avec la précontrainte imposée au matériau. Plus on précontraint le polymère et plus il cristallise ce qui induit une diminution des constantes électriques aux faibles fréquences mais aussi une diminution de la plage de fonctionnement en température.

Grâce aux lois analytiques découlant de toutes ces mesures expérimentales (loi de Debye par exemple), les paramètres électriques de la structure sont estimables pour tout type de scenarii, et peuvent être injectés au sein du modèle analytique développé (chapitre 3). Outre le calcul possible de la force électrostatique, ces mesures nous permettent de calculer les pertes électriques, le rendement du

dispositif, sa constante de temps et son échauffement. Toutes ces données sont cruciales pour la conception d'une application. Un exemple d'utilisation de ces mesures est réalisé au paragraphe 3.3.

Enfin, il est à noter que cette démarche de caractérisation complète est adaptable à tout matériau diélectrique, pouvant servir dans d'autres applications type générateur ou actionneur.

2.6 Conclusion sur le choix des matériaux

Au cours de ce chapitre, nous avons déterminé le comportement des polymères diélectriques en mode actionneur et en mode générateur, en particulier tous les paramètres nécessaires à la mise en place d'un modèle générateur.

Puis, nous avons comparé et choisi le polymère le plus adapté pour des applications de récupération d'énergie, ainsi que les électrodes associées.

Enfin, nous avons mis en place une caractérisation mécanique et électrique complète du polymère avec ses électrodes. Nous avons testé l'influence de différents paramètres sur les constantes intrinsèques telles la température, la fréquence, la précontrainte ou la nature de l'électrode. Outre la compréhension des phénomènes physiques au sein du matériau, toutes ces mesures sont utiles pour mettre en place un modèle analytique fiable et adaptable, ce que nous développons au chapitre suivant.

Chapitre 3 : Les polymères diélectriques – Modélisation analytique

Au cours des chapitres précédents, nous avons déterminé le fonctionnement des polymères diélectriques, et en avons réalisé une caractérisation complète en fonction de multiples paramètres.

Ce chapitre est quant à lui consacré à la mise en place d'un modèle analytique pour les polymères diélectriques. Ce modèle analytique en mode générateur doit être adaptable et modulable à tous scenarii. Il doit être simple à mettre à place mais fiable.

Ce modèle est expliqué sur un exemple particulier et validé par des mesures expérimentales.

3.1 Définition et domaine de validité du modèle analytique

3.1.1 Introduction

Nous avons choisi le polymère capable de récupérer le plus d'énergie d'origine mécanique, et nous avons caractérisé ses propriétés mécaniques et électriques.

Concernant les propriétés thermiques, la dilatation thermique est faible par rapport à l'élongation mécanique que subit le polymère lors de cycles actionneur ou générateur. Cette dilatation ne jouera pas un rôle important dans le mouvement du polymère. Si bien que le modèle analytique, mis en place, développe un couplage faible entre la partie thermique et la partie électromécanique, elle-même en couplage fort (figure 3.1) **[MEO 2000]**

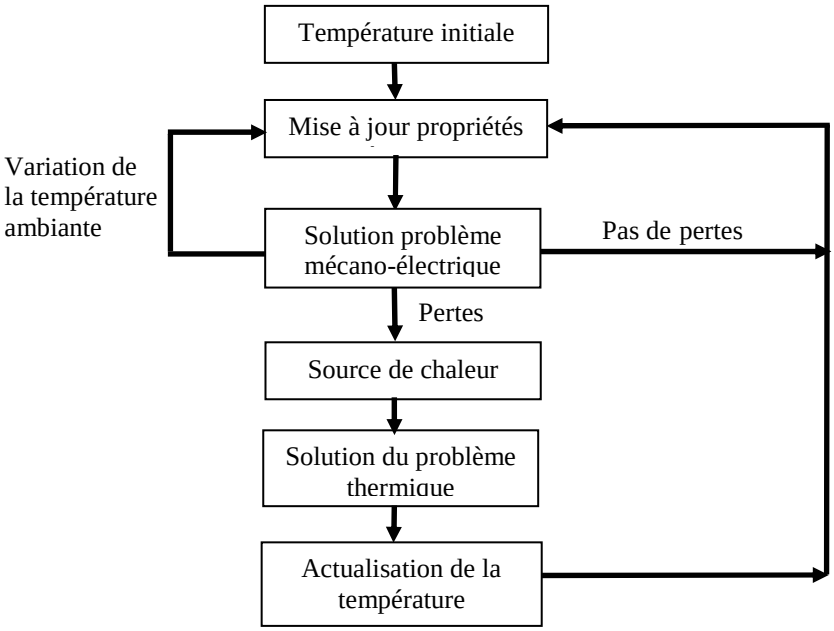


Figure 3.1 : Couplage au sein d'un polymère diélectrique

A partir de la température initiale, et pour une application donnée (fréquence et précontrainte fixes), les propriétés électriques et mécaniques du polymère sont calculables grâce aux multiples caractéristiques effectuées et aux lois en découlant. Le problème électromécanique peut donc être posé et résolu. Selon les pertes développées au cours d'un cycle générateur par le polymère, plusieurs options se présentent alors :

- le polymère développe des pertes électriques et mécaniques. Ces pertes sont considérées comme une source de chaleur pour la résolution du problème thermique.
- pas de pertes
- variation de la température ambiante

Dans deux cas évoqués, la température du polymère est susceptible de varier et par là les propriétés électriques et mécaniques du polymère doivent être mises à jour avant la réalisation d'un prochain cycle générateur. Ce modèle analytique est bien en deux étapes. La première concerne le couplage fort électromécanique et la seconde est la partie thermique.

<u>Remarque :</u> La valeur de la conductivité thermique ($0.16 W.m^{-1}.K^{-1)}$ est faible au regard de celles des métaux (acier : $46 W.m^{-1}.K^{-1}$) mais toutefois plus grande que celle de l'air ($0.026 W.m^{-1}.K^{-1}$). Cette valeur de conductivité faible traduit un faible transfert thermique de chaleur par unité de surface et de temps. Si le polymère s'échauffe trop, la chaleur aura du mal à s'évacuer, engendrant pertes et potentiellement un nombre de cycles limités.

3.1.2 Modèle analytique mécano-électrique

Le modèle analytique mis en place est centré autour de l'équation du mouvement lors de la phase active. Cette équation est fonction de l'histoire du matériau, des phases de pré-déformation et de déformation mécaniques. Elle prend aussi en compte les conditions aux limites imposées à la structure.

Soit un système de coordonnées cartésiennes (O, x_1, x_2, x_3) avec un repère fixe galiléen, le matériau est isotrope, incompressible et fonctionne en régime isotherme.
On choisit de modéliser une membrane rectangulaire de longueur x_{10}, de largeur x_{20}, et d'épaisseur x_{30}. Sur chacune des phases du cycle générateur, nous étudions les équilibres entre contraintes mécaniques et électriques. A partir de ces équilibres, l'équation du mouvement de la phase active est déduite (équation 59).

$$m\vec{a} = \vec{f}_{mécanique} + \vec{f}_{électrique} + \vec{f}_{poids} + \vec{f}_{extérieure} \tag{59}$$

Toutes les forces mentionnées au sein de l'équation 59 sont fonction des variations du coefficient d'extension λ, des paramètres propres au matériau (paragraphe 2.5 et 2.6), des dimensions initiales et du mode de déformations principales.

Deux modes de fonctionnement sont possibles :

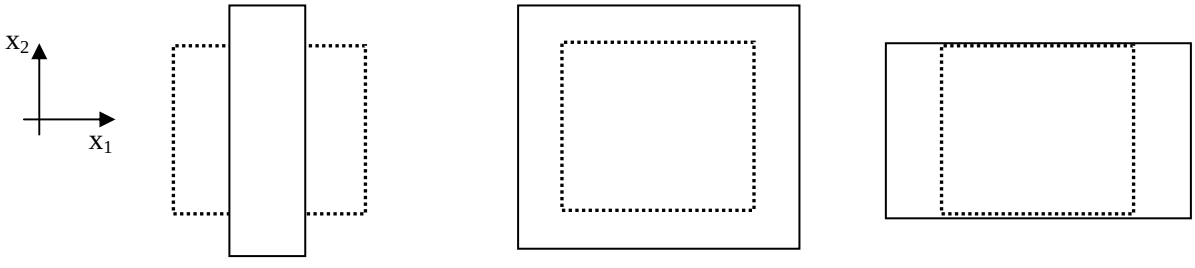
- Premier mode : fonctionnement libre ($\vec{f}_{extérieure} = \vec{0}$)
- Second mode : fonctionnement forcé ($\vec{f}_{extérieure} \neq \vec{0}$)

Dans le premier mode de fonctionnement, la structure est libre de se mouvoir lors de la phase active. Ce mode de fonctionnement se retrouve dans les applications « mono coup » : mouvement du talon lors de la marche humaine, appui sur une touche de clavier…
Dans le second mode de fonctionnement, la force extérieure contribue au mouvement et peut imposer les variations minimales et maximales de la structure. Ce mode de fonctionnement se retrouve dans les applications « oscillantes » « vibratoires » : mouvement de la houle, vibration basses fréquences au sein d'une voiture…

Pour ces deux modes de fonctionnement, il existe trois déformations simple dite « de base », ou principale, pour une membrane plane :

- déformation uniaxiale
- déformation biaxiale
- déformation « pure shear »

Chaque déformation engendre des mouvements particuliers décrits sur la figure 3.2.



Déformations uniaxiales | Déformations biaxiales | Déformations « pure shear » bloquée sur une direction

Figure 3.2 : Trois déformations de base dans le plan

En pointillés est représenté l'état initial et en trait plein l'état final. Pour chacun de ces trois déformations de base, le tenseur de déformations *U*, le tenseur de Finger *B* (déformations locales des

aires) et les invariants I_1, I_2, du tenseur de Finger sont calculés au regard des définitions données au chapitre précédent (tableau 3.1). Les déformations biaxiales sont prises symétriques ($\lambda_1 = \lambda_2 = \lambda$).

	Tenseur des déformations	**Tenseur de Finger**	**Invariant**	**Variation maximale de capacité**
	U	**B**	**I_1 et I_2**	**C_{max}/C_{min}**
Déformations uniaxiales	$\begin{vmatrix} \lambda & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{\sqrt{\lambda}} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\sqrt{\lambda}} \end{vmatrix}$	$\begin{vmatrix} \lambda^2 & 0 & 0 \\ 0 & \frac{1}{\lambda} & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda} \end{vmatrix}$	$I_1 = \lambda^2 + \frac{2}{\lambda^2}$ $I_2 = \frac{1}{\lambda^2} + 2\lambda^2$	λ
Déformations biaxiales	$\begin{vmatrix} \lambda & 0 & 0 \\ 0 & \lambda & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda^2} \end{vmatrix}$	$\begin{vmatrix} \lambda^2 & 0 & 0 \\ 0 & \lambda^2 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda^4} \end{vmatrix}$	$I_1 = 2\lambda^2 + \frac{1}{\lambda^4}$ $I_2 = \frac{2}{\lambda^2} + \lambda^4$	λ^4
Déformation "pure share"	$\begin{vmatrix} \lambda & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda} \end{vmatrix}$	$\begin{vmatrix} \lambda^2 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{\lambda^2} \end{vmatrix}$	$I_1 = \lambda^2 + \frac{1}{\lambda^2}$ $I_2 = \frac{1}{\lambda^2} + \lambda^2$	λ^2

Tableau 3.1 : Grandeurs caractéristiques de chacun des trois modes de base

Au vu du tableau 3.1, les déformations biaxiales symétriques assurent une variation maximale de capacité et donc une énergie électrique récupérable maximale. Nous nous servons donc de ce mode de déformation comme fil directeur dans la modélisation analytique. La figure 3.3 représente le générateur et ses différentes zones.

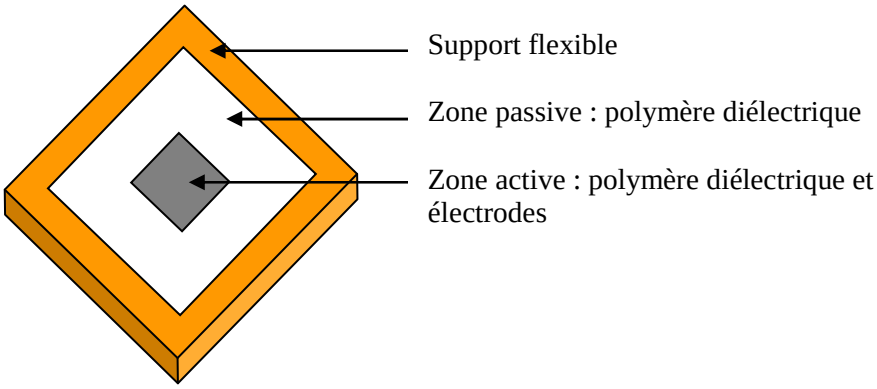


Figure 3.3 : Forme type d'un générateur en déformations biaxiales

Chaque phase du cycle générateur pour des déformations biaxiales est modélisée à partir des lois mécaniques et électriques déterminées aux paragraphes précédents. Les contraintes principales pour

chaque phase sont calculées et servent à mettre en place l'équation du mouvement de la phase active. Cette démarche est valable pour les deux modes de fonctionnement libre ou forcé.

3.1.2.1. Phase de pré-déformation et relaxation

Cette phase est la phase OA du cycle de la figure 2.3 : on étire mécaniquement le polymère. Seules des forces mécaniques sont mises en jeu au sein du polymère. Le tenseur des contraintes principales vraies est traduit par l'équation 60.

$$\begin{pmatrix} \lambda_{p1}\dfrac{\partial W}{\partial \lambda_{p1}} - p & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{p2}\dfrac{\partial W}{\partial \lambda_{p2}} - p & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{p3}\dfrac{\partial W}{\partial \lambda_{p3}} - p \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{p1} & 0 & 0 \\ 0 & T_{p2} & 0 \\ 0 & 0 & T_{p3} \end{pmatrix} \tag{60}$$

avec

λ_p coefficients d'extension lors de la phase O à A de la figure 2.3
T_{p1}, T_{p2},, T_{p3} sont les contraintes découlant des forces extérieures appliquées par l'utilisateur.

Notons qu'il est plus facile d'étirer le matériau grâce à une contrainte dans le plan (T_{p1} ou T_{p2}) que selon l'épaisseur (T_{p3}). Pour un même niveau d'étirement, la valeur de la contrainte à appliquer selon l'épaisseur est 100 à 1000 fois supérieure à la valeur de la contrainte dans le plan.

Dans l'équation 60, la pression hydrostatique p est inconnue et est déterminée à partir des valeurs des contraintes T_{p1}, T_{p2},, T_{p3} qui traduisent les conditions aux limites. A partir de cette égalité de tenseur, on peut déterminer la valeur de la pré-déformation λ_p pour une contrainte extérieure donnée, ou la valeur de la contrainte à appliquer pour obtenir la pré-déformation souhaitée. Il découle ainsi de cette égalité la valeur de la précontrainte T_p appliquée au polymère.

En effet, en reprenant l'équation 60, la contrainte selon l'axe 3 est nulle ($T_{p3} = 0$). Et, pour être en déformations biaxiales symétriques, les contraintes selon les axes 1 et 2 dans le plan sont égales ($T_{p1} = T_{p2} = T_p$). Ainsi, avec la loi de comportement mécanique du polymère (paragraphe 2.5), on obtient l'expression de la précontrainte (équation 61).

$$T_{p,inst}(\lambda_p, t) = -3\breve{C}_{10}^R(2\lambda_p^2 - \frac{1}{\lambda_p^2}) - 3\breve{C}_{20}^R(\lambda_p^2 - \frac{2}{\lambda_p^2}) \tag{61}$$

avec

λ_p variant de 1 à $\lambda_{p,fin} = \lambda_A$, valeur au point A du cycle de la figure 2.3

Or, selon le cycle de la figure 2.3, lors de la fabrication du générateur, le polymère est précontraint. Puis, après relaxation, il est pris en sandwich dans son support. Ainsi, ce n'est pas la valeur de la précontrainte instantanée $T_{p,inst}$ qui est utilisée dans la modélisation mais la valeur de la précontrainte après relaxation T_p. Pour tenir compte de cette relaxation dans l'expression de la précontrainte (équation 61), le temps inclus dans les constantes C_{ij}^R est pris à 1000s. Au final, la contrainte résiduelle est donnée par l'équation 62.

$$T_p = T_{p,inst}(\lambda_A, 1000) \tag{62}$$

3.1.2.2 Phase d'actionnement

Cette phase est la phase AB du cycle de la figure 2.3 : le polymère est étiré mécaniquement. Les mêmes égalités que pour la phase de pré-déformation peuvent être écrites (équation 63).

$$\begin{pmatrix} \lambda_{act1}\dfrac{\partial W}{\partial \lambda_{act1}} - p & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_{act2}\dfrac{\partial W}{\partial \lambda_{act2}} - p & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_{act3}\dfrac{\partial W}{\partial \lambda_{act3}} - p \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_{act1} & 0 & 0 \\ 0 & T_{act2} & 0 \\ 0 & 0 & T_{act3} \end{pmatrix} \tag{63}$$

avec

λ_{act} coefficient d'extension lors de la phase A à B de la figure 2.3

La continuité entre la phase de pré déformation et la phase d'actionnement se traduit par une égalité sur les contraintes mises en jeu au point A du cycle de la figure 2.3 (équation 64).

$$\begin{cases} T_{act1}(\lambda_A, 0) = T_{p1} \\ T_{act2}(\lambda_A, 0) = T_{p2} \\ T_{act3}(\lambda_A, 0) = T_{p3} \end{cases} \tag{64}$$

Ainsi, la contrainte T_{act} s'exprime en fonction de la précontrainte T_p connue. Le coefficient d'extension λ_{act} varie entre 1 et $\lambda_{act,fin} = \lambda_B$ coefficient d'extension au point B. La figure 3.4 permet de situer correctement ces variations par rapport à la loi de comportement du matériau déterminée au chapitre précédent.

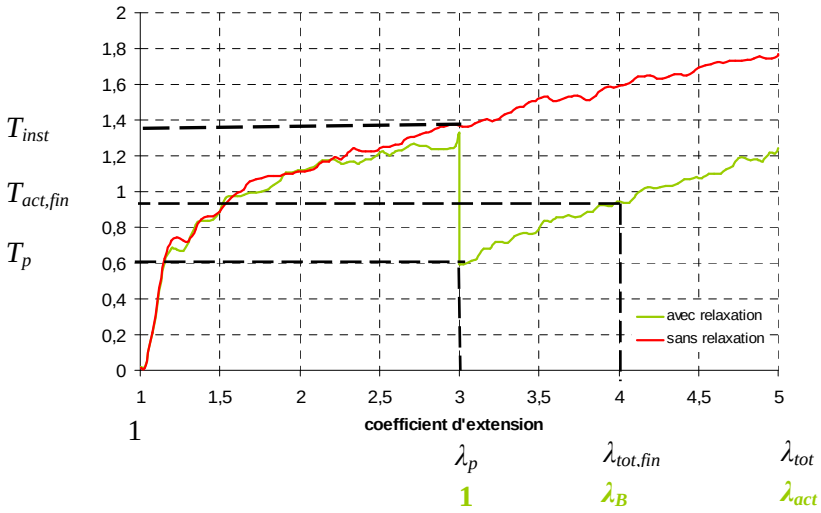


Figure 3.4 : Variation du coefficient d'extension λ_{act}

Sur la figure 3.4, la portion de courbe verte à partir de la valeur λ_p pour le coefficient d'extension total correspond à la loi de comportement du matériau, loi à utiliser dans le modèle analytique.

On note que la déformation totale λ_{tot} subie par le matériau après ces deux phases est gouvernée par l'équation 65.

$$\lambda_{tot} = \lambda_p \lambda_{act} \tag{65}$$

Ainsi, la contrainte T_{act} s'exprime en fonction de ces deux coefficients d'extension (λ_p *et* λ_{act}).

Pour l'exemple des déformations biaxiales symétriques, en reprenant l'équation 63, la contrainte selon l'axe 3 est nulle ($T_{act3} = 0$). Les contraintes selon les axes 1 et 2 dans le plan sont égales ($T_{act1} = T_{act2} = T_{act}$). Ainsi, en tenant compte de la loi de comportement du matériau, on obtient l'expression de la contrainte pour la phase A à B (équation 66).

$$T_{act}(\lambda_{act}, \lambda_p, t) = -3\breve{C}_{10}^{R}(2\lambda_p^2\lambda_{act}^2 - \frac{1}{\lambda_p^2\lambda_{act}^2}) - 3\breve{C}_{20}^{R}(\lambda_p^2\lambda_{act}^2 - \frac{2}{\lambda_p^2\lambda_{act}^2}) - T_{p,inst}(\lambda_p) + T_p \qquad (66)$$

A la fin de cette phase, la contrainte subie par le matériau est donnée par l'équation 67.

$$T_{act,\,fin} = T_{act}(\lambda_B, \lambda_p, t_{fin}) \qquad (67)$$

avec

λ_B coefficient d'extension au point B du cycle de la figure 2.3
t_{fin} temps nécessaire à l'étirement mécanique du polymère

Le temps nécessaire à l'étirement dépend de l'application et plus particulièrement de la fréquence. En effet, dans une application de récupération d'énergie opportuniste, les cycles générateurs électriques viennent se caler sur les déformations mécaniques subies par le ou les objets. Ainsi, la phase A à B du cycle de la figure 2.3 correspond à environ à une demi période mécanique.

La phase électrique de polarisation B à C sur le cycle de la figure 2.3 est très rapide (quelques ms) en comparaison aux phénomènes mécaniques (première relaxation en 0.3s) ce qui induit aucune relaxation au sein du matériau au point B. Ainsi, la contrainte au point B est la même qu'au point C du cycle de la figure 2.3 (équation 68).

$$T_C = T_{act,\,fin} = T_{act}(\lambda_B, \lambda_p, t_{fin}) \qquad (68)$$

<u>*Remarque :*</u> *On a choisit d'étirer mécaniquement le polymère lors de la phase d'actionnement, mais on aurait pu l'étirer en lui imposant un champ électrique (contrainte de Maxwell). En effet, la contrainte de Maxwell induit une pression mécanique sur les électrodes. On parle de pression mécanique équivalente à la contrainte de Maxwell. Le bilan énergétique global ne serait plus positif : on ne récupèrerait plus d'énergie électrique.*

3.1.2.3 Phase active

Cette phase est la phase C à D du cycle de la figure 2.3, elle correspond à l'équilibre entre contraintes mécanique et électrique au sein du polymère (équation 69).

$$\begin{pmatrix} \lambda_1\frac{\partial W}{\partial \lambda_1} - p & 0 & 0 \\ 0 & \lambda_2\frac{\partial W}{\partial \lambda_2} - p & 0 \\ 0 & 0 & \lambda_3\frac{\partial W}{\partial \lambda_3} - p \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} T_1 & 0 & 0 \\ 0 & T_2 & 0 \\ 0 & 0 & T_3 \end{pmatrix} \qquad (69)$$

avec

λ coefficient d'extension lors de la phase C à D de la figure 2.3

En mode de fonctionnement libre, aucune force extérieure d'origine mécanique n'est appliquée au polymère. Il est libre de se mouvoir jusqu'à un équilibre entre forces électrique et mécanique (point D sur le schéma 2.3).
La contrainte (T_1) est la contrainte utile dans le plan (ou contrainte élastique T_e), et son expression est déterminée à partir des conditions aux limites : contrainte imposée par la région passive. De par la continuité et la non relaxation du matériau, sa valeur initiale est donnée par l'équation 70.

$$T_e = T_C \tag{70}$$

En mode de fonctionnement forcé, les contraintes extérieures imposées au matériau sont rajoutées aux contraintes T_1, T_2, T_3.

Pour une déformation biaxiale symétrique, en reprenant l'équation 61, la contrainte selon l'axe 3 est non nulle ($T_3 = -T_m$). Et, les contraintes selon les axes 1 et 2 dans le plan sont égales ($T_1 = T_2 = T_C$). Ainsi, l'équation de la contrainte élastique T_e pour la phase C à D est donnée par l'équation 71.

$$T_e(\lambda, \lambda_p, t) = -3\breve{C}_{10}^R(2\lambda_p^2\lambda^2 - \frac{1}{\lambda_p^2\lambda^2}) - 3\breve{C}_{20}^R(\lambda_p^2\lambda^2 - \frac{2}{\lambda_p^2\lambda^2}) - T_{p,inst}(\lambda_p) + T_p \tag{71}$$

avec

λ coefficient d'extension variant de λ_C=λ_B à λ_D coefficient d'extension en D

Cette expression tient compte de l'hypothèse de pertes viscoélastiques faibles se traduisant par un trajet aller et retour identique (voir figure 2.21).

L'autre contrainte mise en jeu est la contrainte de Maxwell T_m, donnée par l'équation 72.

$$T_m = \varepsilon_0 \varepsilon_r E^2 \tag{72}$$

avec

ε_0 permittivité du vide
ε_r permittivité relative du diélectrique
E champ électrique appliqué au matériau selon son épaisseur

Les cycles que nous allons réaliser sont des cycles à tension V constante ou charge Q constante. Ainsi, la contrainte de Maxwell est exprimée en fonction de la tension (équation 73) ou en fonction de la charge (équation 74), en adéquation avec le cycle réalisé.

$$T_{m,V} = \frac{\varepsilon_0 \varepsilon_r \lambda_p^4 \lambda^4 V^2}{x_{30}^2} \tag{73}$$

$$T_{m,q} = \frac{Q^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_r \lambda_p^4 \lambda^4 x_{10}^2 x_{20}^2} \tag{74}$$

Les valeurs de tension V ou de charges Q sont telles que le champ électrique associé, développé au sein du polymère, reste inférieur au champ électrique de claquage.

Ainsi, pour un fonctionnement libre, l'équation du mouvement lors de la phase active C à D pour un cycle générateur à charge constante est donné par l'équation 75.

$$mx_{10}\lambda_p \frac{\partial^2 \lambda}{\partial t^2} = x_{20}x_{30}[-3\breve{C}_{10}^R(2\lambda_p\lambda - \frac{1}{\lambda_p^3\lambda^3}) - 3\breve{C}_{20}^R(\lambda_p\lambda - \frac{2}{\lambda_p^3\lambda^3}) - \sigma_{p,inst}(\lambda_p) + \sigma_p]$$
$$+ \frac{x_{30}}{x_{10}^2 x_{20}} \frac{1}{\lambda_p^5\lambda^5} \frac{Q^2}{\varepsilon_0\varepsilon_r} + \frac{x_{30}}{x_{10}\lambda_p^2\lambda^2} mg \qquad (75)$$

avec

m masse de la structure
g gravité

Et pour un fonctionnement forcé, l'équation du mouvement est donnée par la loi 76.

$$mx_{10}\lambda_p \frac{\partial^2 \lambda}{\partial t^2} = x_{20}x_{30}[-3\breve{C}_{10}^R(2\lambda_p\lambda - \frac{1}{\lambda_p^3\lambda^3}) - 3\breve{C}_{20}^R(\lambda_p\lambda - \frac{2}{\lambda_p^3\lambda^3}) - \sigma_{p,inst}(\lambda_p) + \sigma_p]$$
$$+ \frac{x_{30}}{x_{10}^2 x_{20}} \frac{1}{\lambda_p^5\lambda^5} \frac{Q^2}{\varepsilon_0\varepsilon_r} + \frac{x_{30}}{x_{10}\lambda_p^2\lambda^2} mg - f_{extérieure} \qquad (76)$$

avec

$f_{extérieure}$ force extérieure appliquée à la structure et déterminable facilement

L'équation du mouvement 75 (ou 76) est fonction du coefficient d'extension λ et prend en compte les phases de pré-déformation, d'actionnement ainsi que les conditions aux limites.

Cette équation ne prend pas en compte le phénomène d'électrostriction au sein du polymère car la contribution de cette dernière est négligeable au vu de la pression de Maxwell. Le poids de la membrane est très faible et peut aussi être négligé dans l'équation 66 si l'on souhaite simplifier cette équation.

Enfin, on souligne que le coefficient d'extension λ est borné par le domaine de fonctionnement du polymère que nous déterminons au paragraphe 3.1.4.

L'équation du mouvement 75 est résolue par la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 afin d'obtenir la valeur finale du coefficient d'extension ($\lambda = \lambda_D$, valeur du coefficient d'extension au point D du cycle de la figure 2.3). Ainsi, les grandeurs (tension, capacité) au point C et D de la figure 2.3 sont connues. L'énergie produite durant la phase active est donc calculable à partir de l'équation 32.

Les pertes d'origine mécanique sont liées au caractère viscoélastique du polymère, et sont déjà prises en compte dans l'équation du mouvement par le biais de la loi de comportement du polymère. Les pertes à soustraire à cette énergie sont donc d'origine électrique et correspondent aux pertes diélectriques (équation 77) et par conduction au travers de la résistance volumique R_p et surfacique R_s (équation 78). Le courant de fuite surfacique est noté i_s.

$$P_{dielec} = \varepsilon_0 w \varepsilon'' E^2 \qquad (77)$$

$$P_{cond,V} = \frac{V^2}{R_p}$$
$$P_{cond,S} = R_s i_s^2 \qquad (78)$$

<u>Remarque :</u> Comme précisé au début du chapitre 2, les pertes par diffusion sont négligeables au sein de ces polymères.

L'énergie récupérée est donc calculable par soustraction de ces pertes à l'énergie produite. Les pertes au sein de la structure sont considérées comme une source de chaleur pour la résolution du problème thermique.

3.1.2.4 Rendement de conversion

Les trois principales grandeurs de sortie sont la tension, le courant et l'énergie par cycle, ou la puissance.

L'expression de l'énergie récupérable ne tient pas compte de la gestion électrique (pertes à la charge et à la décharge) mais permet toutefois de calculer le rendement de l'étage de conversion η (équation 79).

$$\eta = \xi_{abs}\eta_{conv} \tag{79}$$

avec

$$\xi_{abs} = \frac{e_{abs}}{e_{méca}} \tag{80}$$

et

$$\eta_{conv} = \frac{e_{rec}}{e_{abs}} \tag{81}$$

où e_{abs} énergie absorbée par le polymère (équation 82)
e_{meca} énergie mécanique nécessaire pour déformer le polymère (équation 83)
e_{rec} énergie électrique récupérée

soit

$$e_{abs} = f_{Maxwell}\, d \tag{82}$$

$$e_{meca} = f_{méca}\, d \tag{83}$$

avec

$f_{maxwell}$ force de Maxwell (électrostatique) développée par le polymère
$f_{méca}$ force appliquée au polymère
d déplacement subi par le polymère

Ainsi, l'étage de conversion électromécanique, et les énergies mises en jeu, sont schématisés sur la figure 3.5.

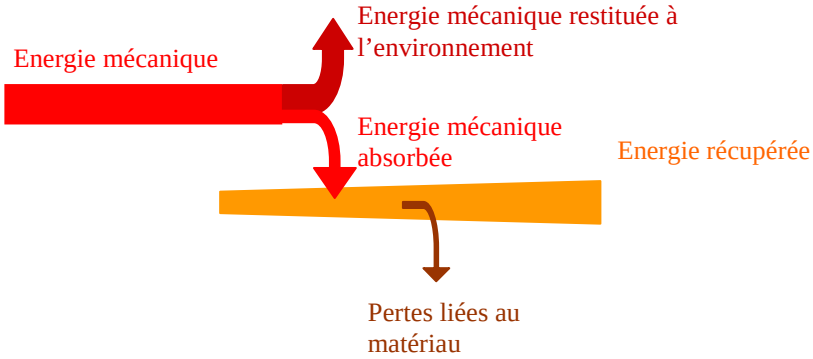


Figure 3.5 : Schéma de l'étage de conversion

Cet étage de conversion est inclus au sein d'un cycle énergétique prenant en compte les pertes liées à la charge et à la décharge du matériau, et l'énergie électrique nécessaire pour effectuer cette charge (figure 3.6).

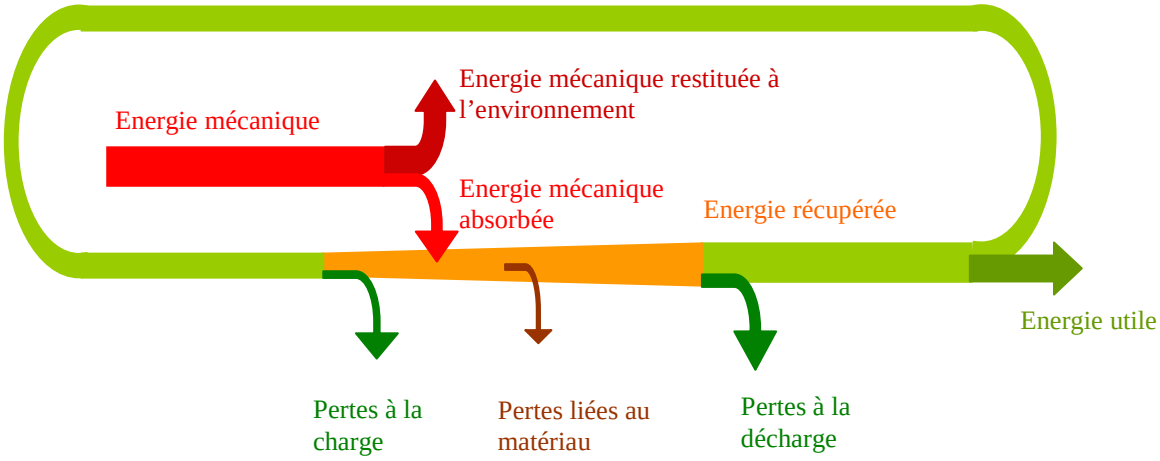


Figure 3.6 : Bilan énergétique global de la structure

Le bilan énergétique global sera mis en place et estimé sur l'application développée (chapitre 4). Dans ce chapitre, nous nous focalisons sur l'étage de conversion seul.

<u>Conclusion :</u> Le modèle électromécanique est mis en place et solvable facilement. Dans ce modèle plusieurs paramètres peuvent varier tel le coefficient de pré-déformation λ_p, la polarisation (V ou Q) ou les dimensions de la zone active. Le couplage faible doit être mis en place afin de déterminer si le matériau s'échauffe, si le nombre de cycles est limité et, par là, si la zone de fonctionnement est réduite.

3.1.3 Modélisation thermique

Le polymère génère des pertes diélectriques, des pertes par conduction mais aussi des pertes viscoélastiques qui sont des sources de chaleur et contribuent à l'échauffement du matériau.
Il nous faut donc déterminer la solution du problème thermique en prenant comme source de chaleur interne, les pertes générées lors du cycle de fonctionnement du polymère.

Le problème thermique se traduit par l'équation de la chaleur et l'écriture des conditions aux limites (équation 81a et 81b).

$$c\frac{\partial\Theta}{\partial t} + div(-\chi\vec{grad}(\Theta)) = K \quad (81a) \quad ; \quad \chi\frac{\partial\Theta}{\partial n} + c\frac{\partial\Theta}{\partial t} = -\Phi_{ext} - \underbrace{h_c(\Theta-\Theta_{ext})}_{\text{convection}} - \underbrace{\zeta\vartheta(\Theta^4-\Theta_{ext}^4)}_{\text{rayonnement}} \quad (81b)$$

avec :

χ conductivité thermique en $W.m^{-1}.K^{-1}$
c capacité thermique
K densité de source thermique (puissance dissipée) en W/m3
Θ température en K
Θ_{ext} température extérieure en K
Φ_{ext} flux thermique fourni par l'extérieur
h_c coefficient d'échange convectif en $W.m^{-2}.K^{-1}$
ζ émissivité du matériau
θ constante de Stephan ($5.67\ 10^{-8}\ W.m^{-2}.K^{-1}$)
n normale aux flux de température

Pour simplifier le problème, on suppose que la chaleur s'évacue selon un axe privilégié : l'épaisseur. On peut alors écrire un modèle 1D selon cet axe de propagation. Cette hypothèse n'est pas erronée car

physiquement, la chaleur va se dissiper plus facilement au travers des électrodes de par leurs propriétés physiques : bonne conductivité thermique, faible épaisseur…
La direction privilégiée des flux de chaleur sera donc verticale, selon l'épaisseur de l'échantillon.

De plus, la puissance volumique dissipée varie avec le temps. On se contente dans un premier temps, d'une source de chaleur égale à la puissance volumique dissipée moyenne.

Ainsi, la température interne Θ_{int} du polymère est obtenue en résolvant l'équation de la chaleur en régime permanent, avec la répartition de température présentée sur la figure 3.7.

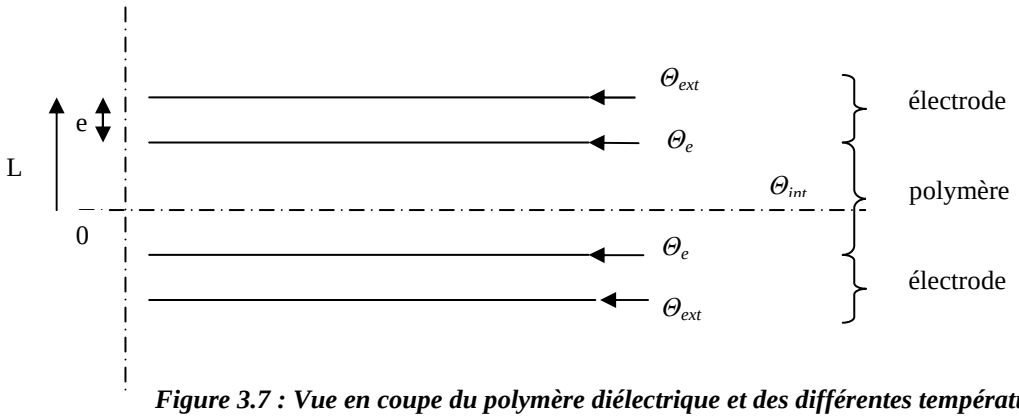


Figure 3.7 : Vue en coupe du polymère diélectrique et des différentes températures

Sur la figure 3.7, Θ_{ext} est la température extérieure, Θ_e celle de l'électrode et Θ_{int} celle du polymère.

L'équation de la chaleur dans les électrodes est résolue pour obtenir la température T_e qui borde le polymère. Puis, l'équation de la chaleur au sein du polymère est résolue pour trouver la valeur de la température sur la ligne médiane T_{int}.

$$\Theta_e = -\frac{K}{2\chi_e}(L-e^2) + \Theta_{ext} + \frac{K}{2\chi_e}L^2 \quad (82a) \qquad , \qquad \Theta_{int} = \Theta_e + \frac{K}{2\chi_p}(L-e)^2 \quad (82b)$$

avec

χ_e conductivité thermique de l'électrode
χ_p conductivité thermique du polymère
K source de chaleur thermique en W

Les pertes électriques et mécaniques, en déformations biaxiales, dans le cas le plus défavorable, sont au maximum de 1mJ. En fonction de la fréquence de fonctionnement, l'augmentation de température obtenue en régime thermique permanent varie entre 0.03°C et 0.08°C ce qui est faible et sera négligée.

<u>Conclusion :</u> On peut considérer que le polymère évolue à température constante, sans apport extérieur de chaleur car les pertes n'engendrent pas d'augmentation de la température du polymère. Ainsi, seul un changement de la température ambiante peut faire varier la température interne du polymère.
Les pertes thermiques ne limitent pas le nombre de cycles et n'influent pas sur la zone de fonctionnement du polymère.

3.1.4 Domaine de fonctionnement

3.1.4.1. Domaine de fonctionnement en mode actionneur

Le modèle mis en place est valable sur un domaine précis de fonctionnement qui est fonction des ruptures possibles au sein du polymère 3M VHB 4910.

Les ruptures que peut subir un matériau diélectrique sont au nombre de trois **[PLA 2006]**:

- Rupture diélectrique : Ce claquage apparaît si le champ électrique imposé au matériau est supérieur à la valeur limite appelée champ de claquage.
- Rupture mécanique : Le matériau peut s'étirer jusqu'à une valeur limite au-delà de laquelle il se déchire mécaniquement.
- Pull-in : Ce phénomène apparaît quand la condition d'équilibre entre la contrainte élastique et la pression électrostatique ne peut être respectée. Il se forment alors des « rides » sur la surfaces des électrodes.

Ainsi, on cherche à traduire les trois types de rupture en fonction des variables (λ_{act} , λ_p) pour obtenir un graphique des variations du coefficient d'extension en mode actionneur (λ_{act}) en fonction de la pré déformation (λ_p), pour un actionnement biaxial.

Pour la rupture mécanique, il a été déterminé expérimentalement que le polymère 3M VBH 4910 ne pouvait pas être étiré plus de 36 fois en surface ($\lambda_{tot}^2 = \lambda_p^2 \lambda_{act}^2 \leq 36$). La courbe de rupture mécanique λ_{act}^2 en fonction de λ_p^2 (nommée « mécanique » sur la figure 3.8) peut être tracée.

Pour la rupture diélectrique, de nombreuses études ont été publiées et nous prenons les résultats obtenus par J.S. Plante **[PLA 2006]** complétés par nos mesures (figure 3.8).

En ce qui concerne le pull-in, la condition d'équilibre entre contraintes mécanique et électrique ($T_3 = -T_m$) est traduite pour faire apparaître les bonnes variables. La zone non autorisée est alors délimitée par la courbe notée « pull-in » sur la figure 3.8 (zone haute gauche).

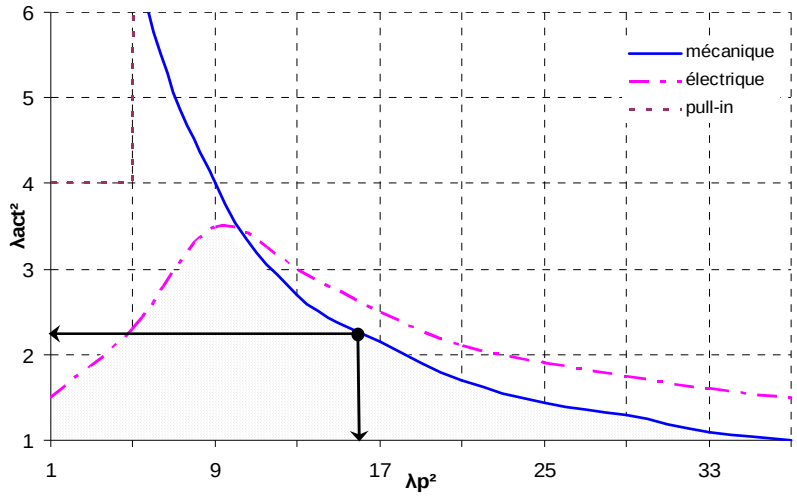


Figure 3.8 : Zone de fonctionnement du polymère diélectrique 3M VBH 4910 en déformation biaxiale

La zone de fonctionnement apparaît grisée sur la figure 3.8. Pour une membrane en déformation biaxiale, la rupture mécanique est la contrainte limitante pour une pré-déformation surfacique λ_p^2 supérieure à 10, sinon c'est la rupture diélectrique. La condition de pull-in ne limite pas les performances du polymère en mode actionneur.

Par exemple, pour une précontrainte de 16 en mode actionneur, c'est la rupture mécanique qui limite la structure. Le coefficient d'extension λ_{act}^2 est limité à 2.25, valeur obtenue sous un champ électrique de 130MV.m^{-1}.

Remarque : En mode actionneur, pour $\lambda_p^2 \leq 10$, la déformation mécanique maximale($\lambda_p^2 \lambda_{act}^2 = 36$) ne peut être atteinte par l'application d'un champ électrique car ce dernier est supérieur au champ de claquage.

3.1.4.2 Domaine de fonctionnement en mode générateur

a. Limites mécaniques et électriques

La figure 3.9 positionne un cycle générateur dans le domaine contrainte électrique (σ_m) en fonction du coefficient d'extension total λ_{tot}. Comme expliqué sur la figure 2.4, les zones actionneur et générateur peuvent ainsi être placées sur ce graphique.

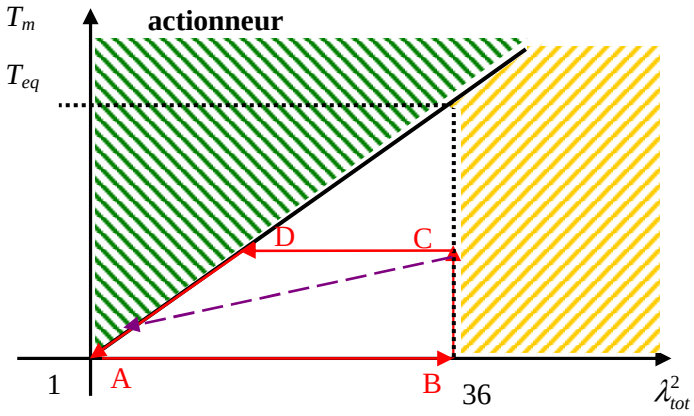


Figure 3.9 : Cycle générateur avec visualisation des zones interdites

En hachure jaune est représentée la zone de rupture mécanique du polymère, en hachure verte est représentée la zone actionneur. Le cycle générateur doit être effectué dans la zone non hachurée ce qui impose une limite sur le champ électrique applicable. En effet, à chaque valeur du coefficient d'extension est associé un champ électrique qui assure à la structure d'être en équilibre (droite passant par le point D). Si le champ électrique appliqué à la structure est supérieur à cette valeur d'équilibre, alors la structure est en mode actionneur, ce que nous ne souhaitons pas. Ainsi, pour chaque prédéformation surfacique λ_p^2 , il existe un champ électrique E_{eq} qui permet au polymère d'atteindre une déformation maximale ($\lambda_p^2 = 36$). Cette valeur de champ ne doit pas être dépassée pour rester en mode générateur lors de la phase active (tableau 3.2).

Pré-déformation	**Déformation mécanique max**	**Champ électrique d'équilibre**
λ_p^2	λ_{act}^2	**MV/m**
9	4	180
16	2,25	130
25	1,44	95
36	1	-

Tableau 3.2 : Champ électrique d'équilibre pour quelques prédéformations

Le tableau 3.2 récapitule les champs électriques maximaux à ne pas dépasser pour rester en zone générateur. Mais d'autres contraintes électriques peuvent apparaître : le pull-in ou la rupture diélectrique.

Le pull-in n'intervient pas en mode générateur puisque l'équation $T_3 = T_m$ trouve toujours une solution dans la zone de fonctionnement dite générateur. Seule la rupture diélectrique peut intervenir et créer une nouvelle limitation du champ électrique maximal applicable. Le champ électrique maximal supportable par la structure est imposé par son épaisseur (tableau 3.3).

Déformation mécanique max λ_{tot}^2	**Champ électrique de claquage** **MV/m**
9	175
16	140
25	120
36	100

Tableau 3.3 : Champ électrique de rupture en fonction de la déformation totale subie par le polymère

En conclusion, la structure est limitée électriquement soit par le champ d'équilibre (pour rester en zone générateur), soit par le champ de rupture électrique. Pour $\lambda_p^2 \leq 10$, c'est le champ électrique de rupture qui limite le domaine de fonctionnement de la structure. Pour $\lambda_p^2 > 10$, c'est le champ d'équilibre E_{eq} qui limite la structure.

Ainsi, à partir du diagramme de fonctionnement (figue 3.7) et des tableaux 3.2 et 3.3, les coefficients d'extension maximale et les champs électriques autorisés pour une pré-déformation donnée sont transcrit au sein du tableau 3.4. Ces données sont valables que le mode de fonctionnement soit libre ou forcé.

Pré-déformation λ_p^2	**Déformation mécanique max** λ_{act}^2	**Champ électrique max** **MV/m**	**Nature**
9	4	175	claquage
16	2,25	130	équilibre
25	1,44	95	équilibre
36	1	100	claquage

Tableau 3.4 : Exemple de déformation et champ électrique maximaux en mode générateur

La zone de fonctionnement du polymère se traduit donc en deux conditions :

- une mécanique liant les coefficients d'extension λ_p et λ_{act} : $\lambda_p^2 \lambda_{act}^2 \leq 36$
- une électrique : champ électrique maximal (tableau 2.9)

<u>Conclusion :</u> Ces limites électriques sont primordiales pour la conception d'une application et l'estimation de l'énergie récupérable. Toutefois, une marge de sécurité d'au moins 10% sera prise par rapport à ces limites mécaniques et électriques pour éviter toute rupture de la structure.

b. Limites en fréquence et température

L'utilisation du polymère comme élastomère est limitée à son plateau caoutchoutique ce qui induit une plage de fonctionnement en température limitée (tableau 3.5).

Pré-déformation λ_p^2	**Température min** °C	**Température max** °C
1	-40	100
9	-10	100
16	0	100

Tableau 3.5 : Plage de température en fonction de la prédéformation imposée au matériau

Au vu du tableau 3.5, plus le matériau est prédéformé et plus la plage de température est restreinte.

Un autre point important est le temps de réponse mécanique de la structure qui impose une plage de fonctionnement réduite en fréquence. Ce temps de réponse peut être estimé à partir des temps de relaxation calculés au chapitre précédent et à partir des modules de Young équivalents.

En petite déformation, le matériau est linéaire et son retour n'est sujet à aucune relaxation mécanique. Le système fonctionne en régime quasi-statique et pour des fréquences inférieures à 100Hz.

Pour des déformations comprises entre 10% et 100%, après la première relaxation ($t_1=0.1s$), le polymère a une déformée finale inférieure à 5%. On suppose que si la déformée finale est inférieure à 5%, la structure est revenue en position initiale. Ainsi pour des déformations comprises entre 10% et 100%, la structure fonctionne en quasi statique et pour des fréquences inférieures à 10Hz.

En grandes déformations (>100%), le système est soumis à plusieurs relaxations dont une lente ($t_2=5s$) et une rapide ($t_1=0.1s$). Avec le même raisonnement, la structure en grandes déformations fonctionne en quasi statique et pour des fréquences inférieures à 1Hz.

Déformation %	**fréquence Hz**
<10	<100
10< <100	<10
>100	<1

Tableau 3.6 : Récapitulatif de la plage de fréquence en fonction de la déformation

<u>Remarque :</u> Les plages de fonctionnement en températures et en fréquences évoluent énormément selon le polymère choisi pour l'application. Avec un polymère en silicone, la plage de températures et de fréquences est plus importante, mais les déformations subies par le polymère sont moindres. Un compromis le plus adéquat possible doit être opéré.

De plus, pour un fonctionnement à charge Q constante, la constante de temps électrique doit être grande devant la constante de temps mécanique pour pouvoir maintenir la condition charge constante. Si ce n'est pas le cas, les charges stockées au sein de la structure se déchargent dans la résistance volumique du polymère. Cette condition restreint la plage de fonctionnement en fréquence en supprimant des fréquences trop basses (chapitre 4 application).

3.1.5 Résolution analytique : mode d'emploi

Chaque application est déterminée par une fréquence de fonctionnement particulière et une température ambiante. A partir de ces informations et des lois analytiques que nous avons mises en place (paragraphe 2.4 et 2.5), les paramètres électriques et mécaniques du polymère sont calculables. Les paramètres à identifier pour le modèle sont :

- du côté électrique
  - la permittivité réelle $\varepsilon' = g_1(\Theta, f, \lambda_p)$
  - la permittivité imaginaire $\varepsilon'' = g_2(\Theta, f, \lambda_p)$
  - la résistance volumique $R_p = g_3(\Theta, f, \lambda_p)$
  - la résistance surfacique $R_s = g_4(\lambda_{act})$
- du côté mécanique
  - loi de comportement mécanique $\sigma_{nom} = g_5(\lambda, \lambda_p, \Theta)$

Puis, les déformations principales imposées à la structure lors de la réalisation du cycle de la figure 2.3 sont déterminées. Ce qui, avec la démarche mise en place au paragraphe 2.8, permet d'aboutir à l'équation du mouvement de la phase active. La résolution de cette équation par la méthode de Runge-Kutta d'ordre 4 permet d'obtenir les variations de capacités réalisées par le dispositif. A partir du circuit électrique (figure 2.12) et les équations 77 et 78, l'énergie récupérable est calculable. Les pertes sont faibles est n'induisent pas d'augmentation de température du polymère diélectrique. Toutefois, la température ambiante peut varier et donc la température du polymère aussi. Connaissant la nouvelle température, les paramètres du matériau peuvent être mis à jour, et un nouveau cycle peut être opéré.

Une optimisation peut être menée sur la taille de la structure, les déformations occasionnées, la polarisation afin de répondre au mieux au cahier des charges de l'application : par exemple « récupérer X Joules avec un encombrement donné » ou encore « récupérer X Joules sous Y volts ». En effet, l'énergie récupérable peut s'exprimer en fonction des dimensions, des déformations subies, de la polarisation et des paramètres du matériau, permettant ainsi de trouver les valeurs adéquates pour chacun de ces paramètres.

Le modèle analytique mis en place s'adapte à de multiples scénarii en fonction des déformations principales subies, de la fréquence de fonctionnement et de la température ambiante. Toutefois, ce modèle analytique est valable pour des sollicitations principales simples. Pour des sollicitations plus complexes, il est possible de diagonaliser pour travailler en sollicitations principales mais le modèle analytique risque d'être complexe à écrire. Dans ce cas, une simulation numérique par éléments finis, peut être plus simple à manipuler, pourra être mise en place.

3.2 Quelques résultats théoriques et courbes caractéristiques

Nous nous plaçons dans le cas de déformations biaxiales symétriques selon l'axe x. Pour cela, nous utilisons le modèle développé, au paragraphe 3.1, en fonction du coefficient d'extension λ, selon l'axe x. Nous allons étudier une série d'exemples afin d'arriver pas à pas à une utilisation optimale du générateur diélectrique.

Ce générateur est composé du diélectrique 3M VHB 4910 et d'électrodes en graisse d'argent conductrice (Circuit Work 7100).

L'énergie tracée dans chacun de ces exemples correspond à l'énergie récupérable pour un cycle, c'est-à-dire l'énergie produite sur un cycle à laquelle on soustrait les pertes électriques par conduction.

3.2.1 Comparaison des cycles générateurs pour une déformation maximale

3.2.1.1 Cycle en quasi-statique

Le générateur est une membrane carrée de 1 centimètre de côté et 1 millimètre d'épaisseur au point A de la figure 2.3. La phase active (C à D sur la figure 2.3) peut être réalisée à tension V constante ou charge Q constante. Et le polymère peut être précontraint ou non (phase O à A de la figure 2.3). Le tableau 3.7 récapitule les cas testés pour une déformation maximale ($\lambda_{tot} = 6$) en tenant compte du domaine de fonctionnement mis en place.

Nature du cycle	Précontrainte λ_p	Déformation active λ_{act}	Limite électrique
Tension constante	3	2	<2800 V
	4	1,5	<2800 V
Charge constante	3	2	$<1{,}77.10^{-6}$ C
	4	1,5	$<1{,}77.10^{-6}$ C

Tableau 3.7 : Tableau récapitulant les cas simulés

Les caractéristiques des générateurs sont déterminées à partir des mesures électriques (paragraphe 2.5) et mécaniques (paragraphe 2.4) et sont données au sein du tableau 3.8.

		λ_p=3	**λ_p=4**
x_{10}	**cm**	0,33	0,25
x_{20}	**cm**	0,33	0,25
x_{30}	**mm**	1	1
m	**g**	1.10^{-4}	6.10^{-5}
T	**°C**	20	20
λ_{act}		2	1,5
ε_r		5	4,6
ε''	**f=1Hz**	0,034	0,0471
R_p	**GΩ**	280	114
R_s	**Ω**	3	3

Tableau 3.8 : Caractéristiques des générateurs simulés

Pour les cas décrits au sein du tableau 3.7, l'énergie électrique récupérable est calculable à partir du modèle mis en place (équation 75) et du domaine de fonctionnement. L'énergie électrique récupérée en fonction de la tension de polarisation est tracée sur la figure 3.10 pour un fonctionnement libre.

Les courbes notées « lp=4 » correspondent à un coefficient de prédéformation λ_p de 4, et celles notées « lp=3 » correspondent à un coefficient de prédeformation λ_p de 3. Les courbes avec un « V » traduisent un cycle à tension V constante et celles avec un « Q » traduisent un cycle à charge Q constante.

<u>Remarque :</u> Afin de pouvoir comparer facilement ces différents cycles, l'énergie sera toujours tracée en fonction de la tension de polarisation :

- *pour un cycle à tension V constante : cette tension V est celle à laquelle est soumis la structure*
- *pour un cycle à charge Q constante : cette tension est celle sous laquelle les charges sont injectées à la capacité maximale*

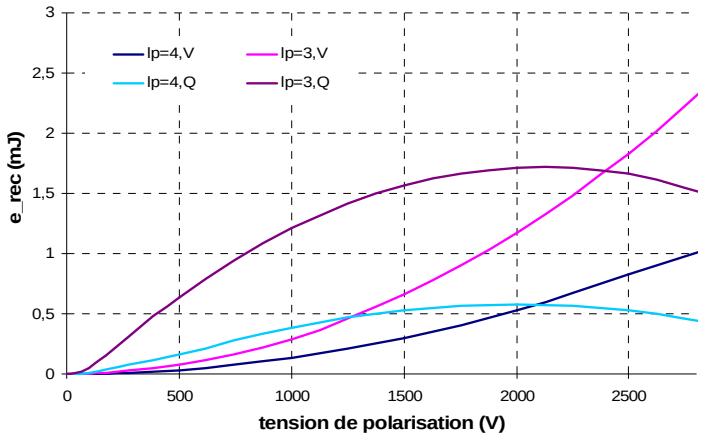


Figure 3.10 : Energie récupérée pour les cas simulés du tableau 2.15, en fonction de la tension de polarisation

Sur la figure 3.10, pour une déformation maximale, sous une polarisation donnée, plus la variation de capacité est importante et plus l'énergie récupérée est importante que le cycle soit à charge *Q* constante ou à tension *V* constante. Ainsi, pour une déformation maximale, moins le polymère est précontraint et plus on récupère d'énergie électrique. On récupère donc naturellement plus d'énergie avec une structure dont le coefficient de prédéformation est de 3 qu'une structure dont ce même coefficient est de 4.

Toutefois, il n'y pas de cycle préférentiel permettant de récupérer plus d'énergie, tout dépend de la valeur de tension de polarisation imposée au polymère. L'énergie récupérable est fonction de la tension de polarisation et de la variation de capacité, elle-même fonction de la tension de polarisation.

Toutefois, on peut noter qu'un cycle à charge *Q* constante nécessite d'amener moins d'énergie de charge qu'un cycle à tension *V* constante et est donc à ce titre plus rentable en terme de bilan global d'énergie.

Sur la figure 3.10, avec une masse volumique de $0.96 g.cm^{-3}$ pour le polymère 3M VHB 4910, la densité d'énergie récupérée pour les cycles simulés est au maximum de $0.24 J.g^{-1}$. Elle est atteinte pour un cycle à charge *V* constante sous une polarisation de 2800V. Théoriquement, la densité d'énergie récupérable maximale est de $0.42 J.g^{-1}$, pour un polymère non précontraint sous déformée maximale et une tension de polarisation maximale. Mais, on n'utilisera jamais le polymère dans ce cas de figure, car la tension de sortie est très très élevée en fin de cycle (>10 000V). La densité d'énergie maximale est 10 fois plus importante que celle obtenue avec des polymères piézoélectriques mais du même ordre de grandeur que celle obtenue avec des polymères électrostrictifs. Toutefois, les polymères électrostrictifs sont moins simples à synthétiser, à utiliser, sont beaucoup plus cher que les polymères diélectriques et ne se déforment que très peu (<5%).

<u>Conclusion :</u> Plus on augmente l'amplitude de la déformation active et plus on peut récupérer de l'énergie électrique. Pour une prédéformation donnée, un cycle à charge *Q* constante génère plus d'énergie qu'un cycle à tension *V* constante jusqu'à une certaine valeur de tension de polarisation.

Le comportement pour un cycle à charge *Q* constante et pour un cycle à tension *V* constante diffère : l'énergie récupérée en fonction de la tension de polarisation n'a pas la même allure. L'énergie récupérée peut être exprimée en fonction de la variation de capacité engendrée durant le cycle et en fonction de la tension de polarisation. L'équation 83 est l'expression de cette énergie pour un cycle à tension *V* constante, et l'équation 84 pour un cycle à tension *Q* constante.

$$e_{rec,V} = \frac{1}{2}(C_{D,1} - C_{C,1})V_C^2 \tag{83}$$

$$e_{rec,q} = \frac{1}{2}\frac{C_{C,2}}{C_{D,2}}(C_{C,2} - C_{D,2})V_C^2 \tag{84}$$

avec

V_c tension de polarisation ou tension au point C de la figure 2.3
$C_{C,1}$ $C_{C,2}$ capacités au point C de la figure 2.3
$C_{D,1}$ $C_{D,2}$ capacités au point D de la figure 2.3

Sous une même tension de polarisation, le point d'équilibre entre forces mécanique et électrique diffère en fonction du cycle réalisé et donc la variation de capacité diffère aussi, d'où les notations 1 et 2 dans les équations 83 et 84.

Pour un cycle à tension *V* constante, la force électrostatique générée a une allure décroissante en fonction du coefficient d'extension (équation 73). Si bien que sur une large plage de tension de polarisation, le point d'équilibre en fin de phase active (point D sur la figure 2.3) est proche du point au repos de la structure (point A sur la figure 2.3). Ainsi, sur cette plage, la variation de capacité lors de la phase active reste quasi identique et l'énergie récupérée est donc sensiblement proportionnelle au carré de la tension de polarisation (figure 3.10). Ce n'est que sous de hautes tensions de polarisation que la variation de capacité lors de la phase active diminue induisant une chute brutale de l'énergie récupérée au cours du cycle (non visible sur la figure 3.10, au dessus de la tension de claquage).

Pour un cycle à charge *Q* constante, la force électrostatique générée a une allure croissante en fonction de la diminution du coefficient d'extension (équation 74). Si bien que sur la plage de tension de polarisation, la variation de capacité diminue à mesure que la tension de polarisation augmente. D'où l'allure de la courbe d'énergie récupérée.

Conclusion : Un cycle à charge Q constante est optimal sous une tension de polarisation moitié de celle dite d'équilibre. Alors qu'un cycle à tension V constante est optimal sous la tension électrique limite applicable à la structure.

3.2.1.2 Estimation du rendement de l'étage de conversion

Sur la figure 3.10, l'énergie maximale est produite avec un cycle à tension V constante sous 2800V. Le rendement de l'étage de conversion électromécanique est donc maximal en ce point de fonctionnement. La figure 3.11 récapitule les énergies mises en jeu pour ce cycle de fonctionnement.

A partir des définitions posées au paragraphe 3.1.2.4 et des caractéristiques des générateurs simulés (tableau 3.8), les énergies mécaniques et mécaniques absorbées sont estimées. Une force mécanique de valeur théorique 0.58N est nécessaire pour déformer la structure de 100%. La force de Maxwell correspondante à cet état de déformation est de 0.248N.

Pour un cycle à tension constante, avec une structure prédéformée d'un coefficient d'extension λ_p de 3, le rendement maximal de l'étage de conversion est de 39.1%. On note que le rendement entre l'énergie mécanique absorbée et l'énergie récupérée est de 91.5%. Ce rendement, très élevé, est la limite haute théorique, et est directement lié au modèle mécanique choisi pour le polymère (viscoélasticité quasi linéaire avec de faibles pertes, pour la gamme de vitesse de sollicitation choisie).

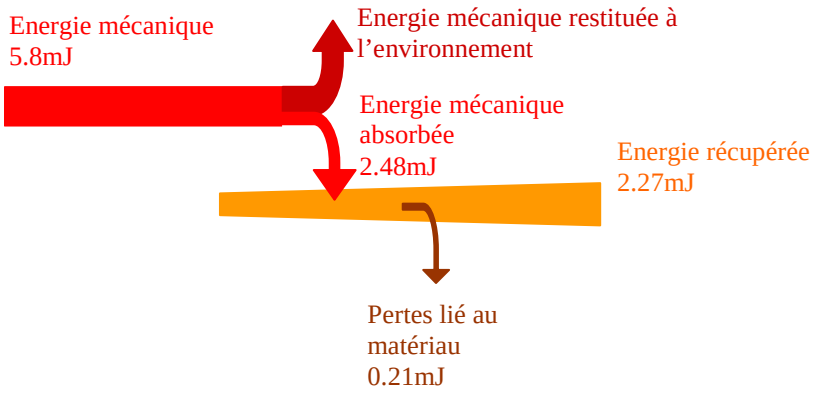


Figure 3.11 : Exemple d'énergies mise en jeu pour un cycle à tension constante

Remarque : Si la structure n'est pas utilisée dans ces conditions optimales en terme de déformations mécaniques et de tension de polarisation, le rendement de l'étage de conversion chutera.

Conclusion : Le rendement de l'étage de conversion est au maximum de 40%. Ce rendement ne prend pas en compte pour l'instant la gestion électrique.

3.2.1.3 Fonctionnement en fréquence

Un fonctionnement en fréquence est visualisé comme une succession de cycles générateurs en quasi-statique, de puissance moyenne produite, calculable à partir de l'énergie produite et de la fréquence de réalisation des cycles. Cette puissance diminuée des pertes diélectriques donne la valeur de la puissance récupérée. La figure 3.12 trace la puissance récupérée et les pertes diélectriques pour le cycle « lp=3,Q » de la figure 3.10, en fonction de la fréquence de fonctionnement.

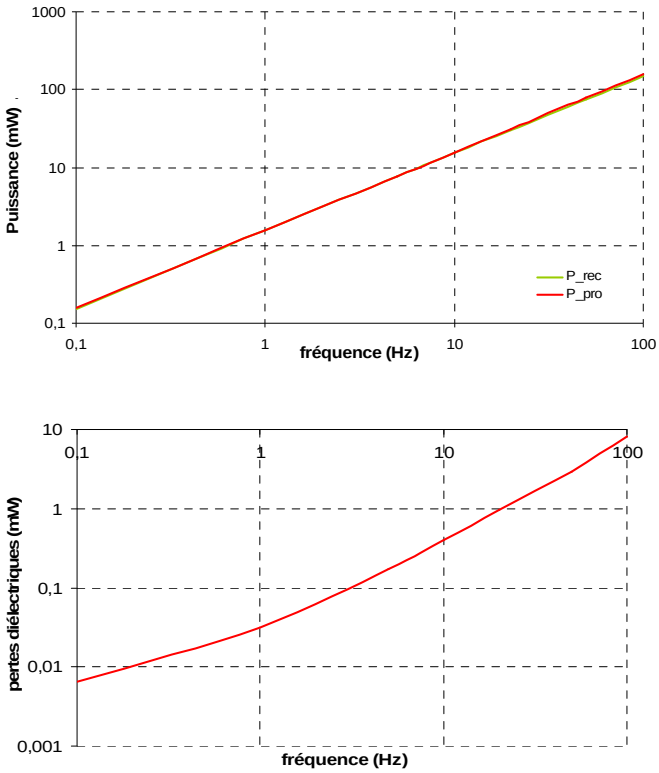


Figure 3.12 : Puissance récupérée en fonction de la fréquence

Sur la plage de fréquences (0,1Hz à 100Hz), les pertes diélectriques sont cent fois plus faibles que la puissance produite. Ainsi, l'écart relatif entre l'énergie produite et l'énergie récupérée est inférieur à 2% sur la plage de fréquence étudiée.

Attention, dans les cas simulés les pertes diélectriques sont assez faibles au regard de l'énergie produite mais, il peut y avoir des cas où ces pertes sont conséquentes. Par exemple si on augmente la température à 80°C et à très basse fréquence (0,1Hz), le facteur de pertes ε'' atteint 1.27 alors qu'il n'est que de 0.071 dans le cas simulés ci-dessus.

<u>Conclusion :</u> Les pertes diélectriques sont faibles pour une majeure partie des applications rencontrées, ne pénalisant pas le rendement de conversion de la structure. Toutefois, dans certains cas particuliers, il faut faire attention à ces pertes. Elles ne peuvent être supprimée du modèle analytique.

3.2.2 Comparaison des cycles générateurs pour une déformation non maximale

Lors du développement d'une application de récupération d'énergie, il sera difficile d'obtenir une déformation maximale car peu de cas dans notre environnement se déforme de 700%. De plus, réaliser une telle déformation risquerait de créer une rupture mécanique de la structure. Le tableau 3.9 récapitule les essais simulés pour les mêmes générateurs qu'au paragraphe 3.2.1 mais avec une déformation active de 50% soit $\lambda_{act}=1.5$.

Nature du cycle	Précontrainte λ_p	Déformation active λ_{act}
Tension constante	1	1,5
	3	1,5
	4	1,5
Charge constante	1	1,5
	3	1,5
	4	1,5

Tableau 3.9: Energie récupérée pour une déformation donnée

La figure 3.13 trace l'énergie récupérée en fonction de la polarisation pour les cas évoqués au sein du tableau 3.9, pour un fonctionnement libre. La même notation qu'au paragraphe 3.2.1 est adoptée.

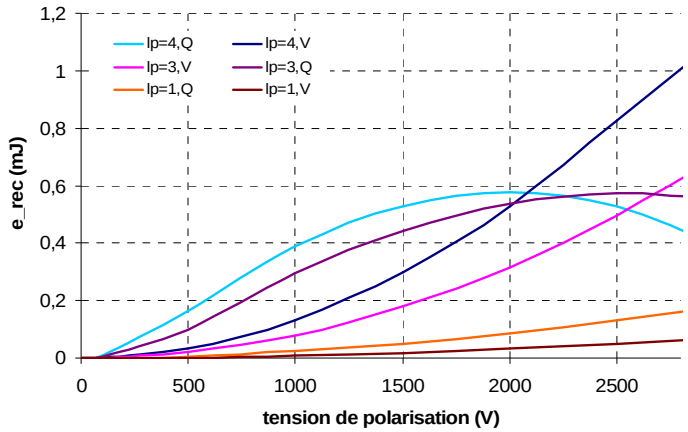


Figure 3.13 : Energie récupérée avec une déformation non maximale

Sur la figure 3.13, pour une déformation non maximale et un cycle donné, plus le polymère est précontraint et plus l'énergie récupérée augmente. En effet, pour une même aire active, c'est avec une

pré-déformation grande ($\lambda_p = 4$), soit une épaisseur minimale, que les variations de capacité sont les plus importantes. On est donc à même de récupérer plus d'énergie sous une tension donnée.

Un cycle à charge Q constante permet de récupérer plus d'énergie qu'un cycle à tension V constante jusqu'à une certaine tension de polarisation. Les mêmes explications que dans le cas précédent peuvent être avancées.

Ces deux exemples valident le fait que l'énergie récupérée est fonction à la fois de la variation de capacité et de la polarisation. La variation de capacité est elle-même liée à la polarisation et aux déformations subies par le polymère.

<u>Conclusion :</u> Prédéformer au maximum le matériau permet de récupérer plus d'énergie pour certaines gammes de tension de polarisation, mais ce n'est pas une généralité.

3.2.3 Comparaison des cycles générateurs pour des épaisseurs différentes

Le polymère que nous avons sélectionné pour notre application de récupération d'énergie est disponible sous différentes épaisseurs 500µm (3M VHB 4905) ou 1mm (3M VHB 4910). Avec un matériau plus fin, nous pouvons espérer obtenir de plus grandes valeurs de capacités qu'avec un matériau épais et donc récupérer plus d'énergie. La figure 3.14 trace l'évolution de l'énergie récupérée en fonction de la tension de polarisation pour deux matériaux (4905 et 4910), pour une prédéformation λ_p de 4, une déformation active λ_{act} de 1,5, et pour un cycle de fonctionnement libre.

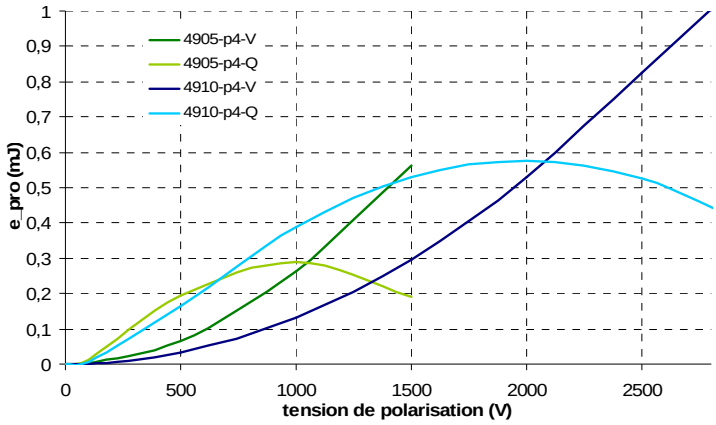


Figure 3.14 : Influence de l'épaisseur du polymère sur l'énergie produite

Le champ électrique maximal applicable est de 100MV.m^{-1} soit 2800V pour le matériau 3M VHB 4910 et 1400V pour le matériau 3M VHB 4905.

Pour les deux cycles, si on diminue l'épaisseur du polymère on augmente les capacités mises en jeux mais, comme la tension de polarisation est moindre, on ne récupère pas forcément plus d'énergie.

Pour de faibles tensions de polarisation (<600V), plus le polymère est fin et plus on est à même de récupérer de l'énergie pour les deux cycles de fonctionnement.

Pour des tensions de polarisation comprises entre 600V et 1400V, le polymère 4905 récupère plus que le polymère 4910 pour un cycle à tension constante, ce qui n'est pas le cas pour un cycle à charge Q constante.

Pour des tensions de polarisation supérieures à 1400V, seul le polymère 4910 est susceptible de récupérer de l'énergie. On note que le polymère 4910 est capable de récupérer plus d'énergie que le

polymère 4905 mais sous de plus haute tension de polarisation, haute tension qui peut être un handicap lors du développement d'une application

<u>Conclusion :</u> Sous de faibles tensions de polarisation, un matériau plus fin peu récupérer plus d'énergie qu'un matériau épais, mais ceci n'est vrai que sur une faible plage d'utilisation. Utiliser un matériau plus fin n'induit pas forcément une augmentation de l'énergie récupérée.

Ces simulations ont été réalisées pour une température ambiante (20°C), la même logique peut être mise en place pour des températures plus élevées.

3.2.4 Fonctionnement en régime forcé

Lors de la phase active, la structure peut subir une force extérieure l'aidant à retourner à sa position initiale tel un ressort mécanique ou force constante appliquée par un utilisateur ou un objet. Ainsi, l'équilibre entre forces électrique et mécanique (point D de la figure 2.3) se déplace. Si la force extérieure est suffisamment importante, la structure retourne à sa position initiale (point A de la figure 2.3). La figure 3.15 trace l'évolution de l'énergie récupérée en fonction de la tension de polarisation pour différentes forces extérieures de retour constantes et pour le cycle générateur « lp=3 ,Q».

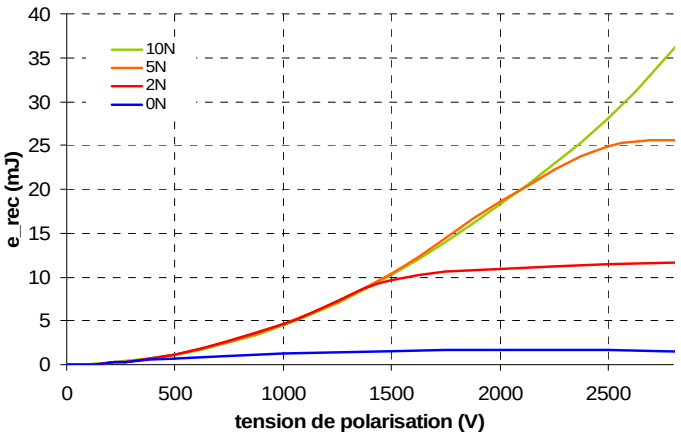


Figure 3.15 : Energie récupérée en régime forcé

Sur la figure 3.15, plus on augmente la force extérieure de retour, c'est-à-dire plus on déplace le point d'équilibre D vers la position initiale A (figure 2.3), et plus on peut récupérer d'énergie sous une tension de polarisation donnée.

Lors de la réalisation d'un cycle générateur à charge Q constante, il faut une force de 10N pour que la structure retourne à sa position d'équilibre sous une tension de polarisation de 2800V.

Sans force extérieure de retour (courbe notée 0N sur la figure 3.16), la densité d'énergie électrique récupérable est de $0.2 J.cm^{-3}$, alors qu'avec une force extérieure de retour de 10N cette densité d'énergie maximale est de $3.2 J.cm^{-3}$.

Toutefois, avec une force de retour, le rendement de l'étage de conversion électromécanique va fortement chuter. Avec une force extérieure de 10N, le rendement de l'étage de conversion n'est plus que de 23.6%, alors que sans force extérieure le rendement peut atteindre 40%.

<u>Conclusion :</u> En régime de fonctionnement forcé, les densités d'énergie récupérable sont plus importantes qu'en régime libre, mais le rendement de l'étage de conversion est plus faible. La force extérieure, utilisée en régime forcé, est soit déterminée et imposée par l'application elle-

même, soit dimensionnée et rajoutée par l'utilisateur pour obtenir une course maximale de la structure.

3.3 Résultats expérimentaux

Un cycle générateur à tension constante pour une membrane en sollicitations biaxiales est mis en place. Il nous faut donc réaliser le support flexible et les électrodes.

Notons que la phase A à B du cycle de la figure 2.3 est réalisé en imposant une pression de Maxwell et non pas un étirement mécanique. Ainsi, une tension V_1 de valeur importante est imposé au dispositif afin qu'il soit dans sa zone actionneur (figure 2.4). La structure doit alors se déformer d'au moins 20% pour avoir des variations de capacités faciles à mesurer (minimisation de l'erreur de mesure). Pour répondre à ce critère, le polymère sera précontraint de 16 en surface ($\lambda p=4$) et sera sollicité par une tension V_1 de 3700V. Le polymère 3M VHB 4910 s'étire alors de 25%. Une fois étiré, la tension commute rapidement de V_1 à une valeur V_2 inférieure. La structure se trouve alors dans sa zone générateur (figure 2.4) et peut entamer la phase active (C à D du cycle de la figure 2.3). La figure 3.16 récapitule les variations de tensions effectuées.

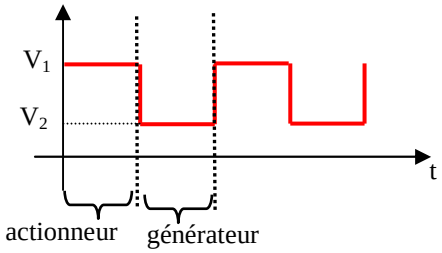


Figure 3.16 : Tension de commande pour les cycles générateur

Ce cycle ne récupère pas d'énergie mais il permet de simuler facilement la phase active (C à D sur la figure 2.3) et donc de valider ou infirmer rapidement le modèle analytique mis en place.

3.3.1 Réalisation du prototype

Pour pré-déformer biaxialement ce polymère, un banc est réalisé (figure 3.17).

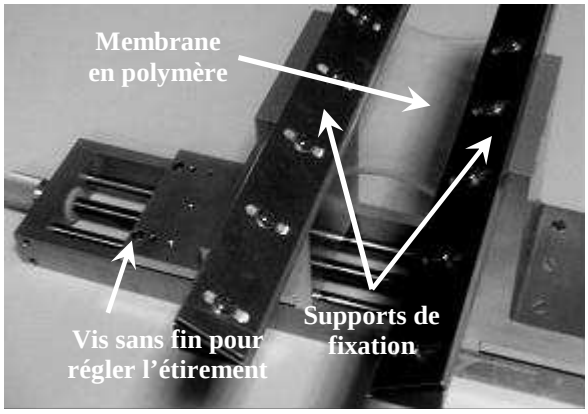


Figure3.17 : Dispositif permettant de pré déformer le polymère diélectrique

Le polymère est étiré manuellement selon sa longueur et fixé une fois étiré sur un support annexe. Les bords de la membrane sont ensuite pincés sur une largeur précise grâce au support de fixation, et le polymère est étiré selon le second axe. Sachant que le matériau est incompressible, imposer les déformées dans le plan permet d'imposer l'épaisseur finale. Un palmer (Mitutoyo) est utilisé pour

mesurer l'épaisseur du polymère. L'hypothèse d'incompressibilité est vérifiée et validée. Ensuite, le polymère est laissé tel quel pendant 30min afin que la relaxation s'opère pleinement. Puis, le film est pris en sandwich entre deux supports flexibles afin de le sortir de ce banc rigide. Enfin, des électrodes souples en graisse conductrice d'argent (Circuit Work 7100) sont déposées manuellement.
Cette phase est décrite en détail au sein de l'annexe 5, et un exemple de générateur est présenté sur la figure 3.18.

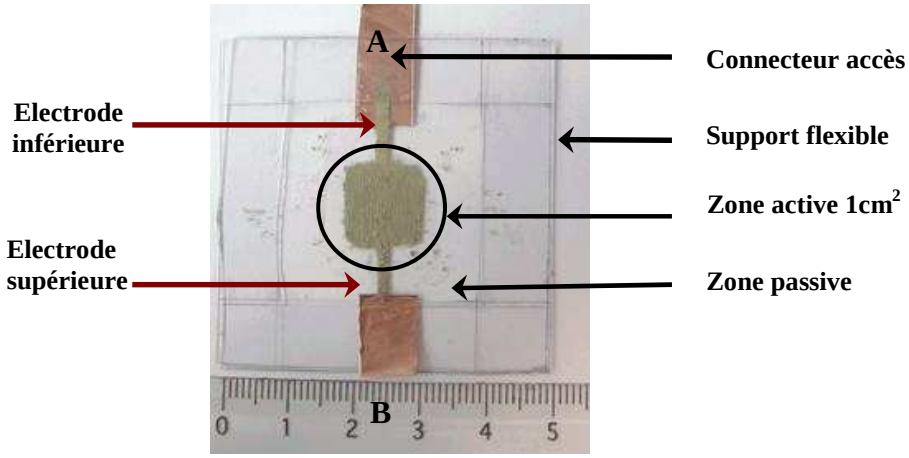


Figure 3.18 : Premier prototype d'un générateur diélectrique

Cette fabrication manuelle n'est évidemment pas un procédé très précis, mais ces premiers prototypes vont nous permettre de valider et/ou corriger notre modèle analytique. Pour de futures applications, automatiser ce procédé de fabrication serait un plus notable.

3.3.2 Caractérisation du prototype

Ce générateur réalisé avec le polymère 3M VHB 4910 est très léger (<1g) et flexible. La figure 3.19 relate l'activation de ce dispositif (phase A à B de la figure 2.3) sous une tension de 3700V.

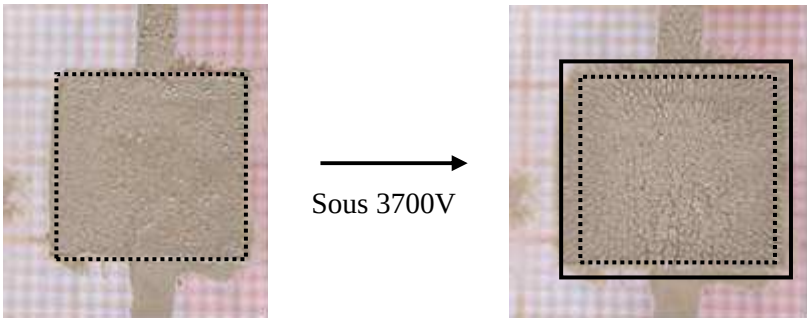


Figure 3.19 : Actionnement du dispositif

Par superposition de ces deux clichés et soustraction des zones qui se chevauchent, la déformation spatiale lors de la phase A à B peut être mesurée avec précision.

Ainsi, sous 3700V, le dispositif se déforme approximativement de 20-25%, ce qui est prévu par l'estimation analytique.

Sur la figure 3.20 est représenté le même dispositif sous une plus haute tension.

La zone active se déforme en surface jusqu'à un certain point puis elle se creuse comme un diaphragme. En effet, le support rigide contraint la zone passive qui elle-même contraint la zone

active. Cette dernière ne peut donc plus s'étirer en surface. Pour éviter ce phénomène, il faut augmenter la taille de la zone passive : par exemple une zone passive 10 fois plus grande que la zone active.

Figure 3.20 : Phase d'actionnement sous 4000 V

La rupture diélectrique pour notre dispositif s'opère vers 5kV (test réalisé sur quatre prototypes) ce qui est proche des valeurs données dans la littérature **[WIS 2007] [PLA 2006]**.

3.3.3 Détermination de l'énergie produite par le prototype en quasi statique

La modélisation électrique du dispositif de mesure est donnée sur la figure 3.21. La tension de polarisation est fournie par un convertisseur DC/HDC de la société EMCO, et est appliquée entre les électrodes supérieures et inférieures (point A et B de la figure 3.18).

Ce convertisseur augmente proportionnellement la tension continue de 0 – 5V à 0 – 10kV, avec un seuil de déclenchement autour de 0.7V. En d'autres termes, de 0 à 0.7V en entrée, la tension de sortie est nulle. Au-delà elle est proportionnelle à la tension d'entrée : 2V en entrée donne 4kV en sortie
Ce convertisseur est de taille centimétrique.

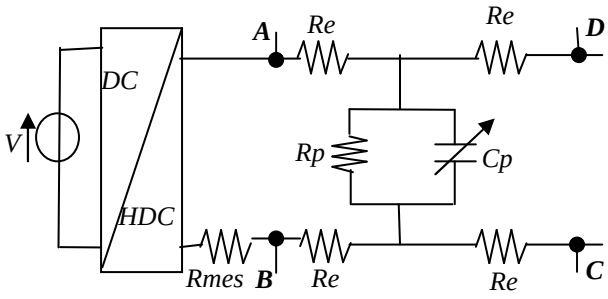


Figure 3.21 : Schéma électrique équivalent du montage expérimental de mesure

Aucune charge n'est connectée à la sortie du générateur en polymère diélectrique (point C et D de la figure 3.21). L'évolution de la tension et le courant généré pendant la séquence au travers d'une résistance de mesure R_{mes} sont mesurés (figure 3.22).

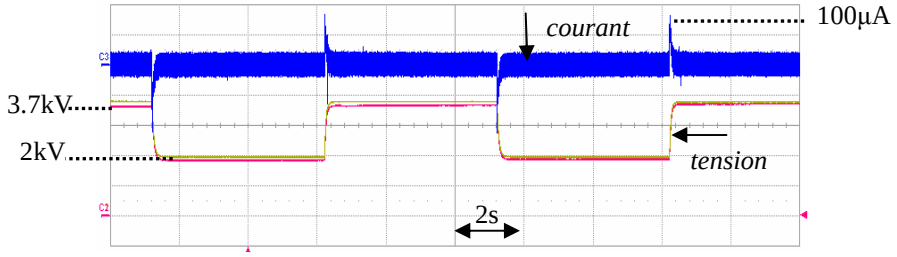


Figure 3.22 : Courbes caractéristiques de tension et courant au sein du générateur en polymère diélectrique

La tension mesurée (courbe rouge sur la figure 3.23) suit bien les cycles imposés par la tension de polarisation (en jaune sur le figure 3.22), mais avec une légère chute de tension due aux résistances d'accès des électrodes. On note que les temps de montée et de descente sont non négligeables mais essentiellement dus au module de conversion DC/ HDC utilisé. Le courant est non nul seulement aux changements de tension. Sa valeur est très faible, d'où un bruit notable lors de la mesure.

A partir de ces relevés, l'énergie électrique récupérable est calculable. La figure 3.23 représente l'énergie récupérée en fonction de la tension de polarisation appliquée sur trois prototypes réalisés.

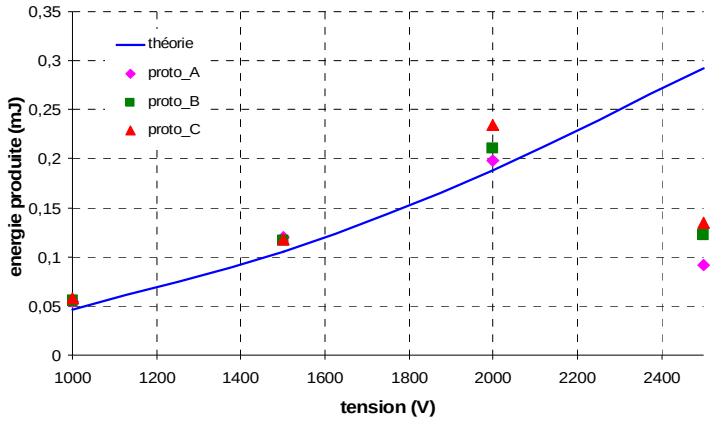


Figure 3.23 : Energie récupérée – valeurs théoriques et expérimentales

Les résultats expérimentaux valident correctement le modèle jusqu'à des tensions de polarisation de 2kV. Au-delà, on note un écart entre valeurs mesurées et valeurs théoriques. Ceci s'explique essentiellement par les difficultés à mesurer les variations de capacité.
En effet, plus la tension de polarisation augmente, plus les variations de capacités entre état étiré et état contraint sont faibles (figure 2.4). Il est alors de plus en plus délicat de mesurer avec précision les variations de capacité du polymère.

Plus la polarisation est faible, plus les variations de capacité sont importantes, plus il est facile de mesurer ces variations et plus l'erreur relative est faible.

<u>Conclusion :</u> Outre ce problème purement technique de mesure, le modèle estime correctement l'énergie récupérable pour une structure donnée. L'erreur relative entre théorie et mesure expérimentale est inférieure à 15%, pour des tensions de polarisation inférieure à 2000V.

3.3.4 Fonctionnement en fréquence du prototype

Des cycles de fonctionnement à une fréquence donnée sont imposés au polymère afin de déterminer les limites en fréquence d'un tel dispositif.

A cause du convertisseur DC/HDC utilisé, le temps de réponse du polymère à une sollicitation électrique est en moyenne de 100 à 200 ms. Ce temps de charge limite la structure à une utilisation à des fréquences inférieures à 10Hz. Nous avons donc généré des cycles aux fréquences de 0.1Hz, 1Hz, 5Hz et 10Hz, afin de noter le comportement mécanique du polymère mais aussi l'évolution des grandeurs électriques de sortie. La figure 3.24 est le relevé des courants et tensions de sortie pour un cycle à une fréquence de 10Hz.

D'un point de vue mécanique, le polymère bouge en fonction des établissements ou coupures de la tension de polarisation.

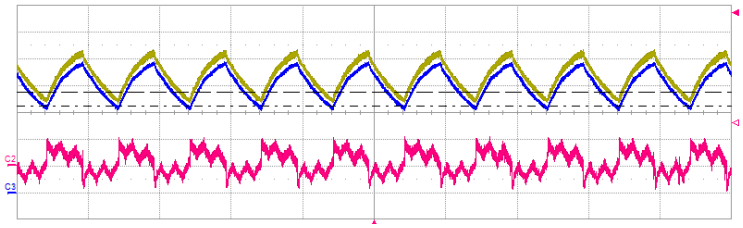


Figure 3.24 : Cycle générateur à une fréquence de 10Hz

Le polymère est sollicité à une fréquence de 10Hz. La tension de polarisation (en jaune) a juste le temps d'atteindre ses valeurs supérieure et inférieure. La tension mesurée (courbe bleu) effectue des va et vient entre valeur haute et valeur faible sans s'établir réellement, le polymère s'étire une première fois puis reste bloqué en position étirée. En effet, au moment où la tension va s'établir en position basse, le polymère commence à bouger, mais la tension varie pour regagner la valeur haute. A l'œil nu, le polymère ne bouge pas et attend que la tension soit établie.

Si on effectue un cycle générateur à une tension V constante, avec une fréquence de fonctionnement plus faible, les courbes de sortie correspondent aux courbes caractéristiques de la figure 3.23.

<u>Conclusion :</u> Ces mesures valident que le comportement en fréquence peut tout à fait être perçu comme une succession de cycles en quasi-statique, avec pratiquement aucune perte supplémentaire. En effet, les pertes diélectriques dues au fonctionnement sont théoriquement très faibles, ce que nous avons pu vérifier expérimentalement puisqu'aucune variation notable n'a été remarquée sur les signaux électriques de sortie.

3.4 Améliorations et pistes à développer

3.4.1 Système d'amorçage

Une structure récupératrice d'énergie à base de polymère diélectrique est très intéressante en termes d'énergie récupérée ($3.2 J.cm^{-3}$). Mais le point négatif est la nécessité d'une tension de polarisation.

Pour remédier à cette difficulté, un système d'amorçage avec un matériau actif direct type piézoélectrique serait une solution envisageable. On peut aussi utiliser des électrets qui maintiendraient la membrane polarisée en permanence.

Une solution récupératrice d'énergie passerait forcément par une solution hybride, ce qui induit des contraintes supplémentaires lors de la phase de conception de l'application. En effet, les matériaux actifs n'ont pas le même seuil de déformation que les polymères diélectriques ni la même impédance électrique. Il faut alors réfléchir à l'emplacement de ces parties actives et à la gestion électrique globale du système.

3.4.2 Tension de polarisation et système multicouche

Au vu des constatations du paragraphe précédent, on cherche à abaisser la tension de polarisation pour qu'un système de type piézoélectrique puisse générer cette tension de polarisation. La tension de polarisation devra donc être au maximum d'une centaine de volts. Sous de si faibles valeurs de polarisation, le système à base de polymères diélectriques n'est pas en utilisation optimale (figure 2.56 à 2.59) et l'énergie électrique récupérable est loin d'être maximale.
Ainsi, pour garder des hauts niveaux d'énergie récupérée en abaissant la tension de polarisation, on peut envisager des systèmes multicouches, en parallèle mécaniquement et en série électriquement.

Avec N couches, on récupérerait N fois l'énergie d'une couche donc on peut se permettre d'abaisser la tension de polarisation **[CAR 2005-b] [SCH 2005] [CAR 2006]**.

Des « empilements » ont été réalisés, mais à ce jour tous se heurtent à des problèmes de claquage diélectrique. En effet, de petites bulles d'air sont présentes entre les différentes couches. Comme le champ électrique de claquage dans l'air est plus faible que dans le polymère diélectrique 3M VHB 4910, tous les prototypes multicouches réalisés claquent sous des seuils de tension beaucoup plus faibles que les systèmes monocouches réalisés.

Pour remédier à ce problème, ces empilements pourraient être réalisés sous vide pour limiter l'apparition de bulles d'air entre les couches, ou encore à l'aide d'une lamineuse qui chasserait les bulles d'air entre les couches.

3.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons modélisé analytiquement les cycles générateur liés aux polymères diélectriques. Ce modèle se limite au cas de déformations simples sur une structure type membrane plane. Gérer des mouvements complexes devient vite très lourd analytiquement, et de tels modèles doivent être développés numériquement.

Ainsi, notre modélisation décrit un cycle complet en mode générateur et, en ce terme, est novatrice. Jusqu'à présent, ne figuraient dans la littérature que des approximations de densité d'énergie récupérable via des hypothèses très simples de capacité variable. Notre modèle décrit le mouvement de la phase active en fonction de l'histoire subie par le matériau et en fonction des conditions aux limites imposées. Beaucoup de paramètres peuvent varier pour traduire différents cas de figure tel le coefficient de pré déformation, le seuil de polarisation, la fréquence mécanique…

L'atout majeur de ce modèle est qu'il permet donc de quantifier l'énergie électrique récupérable en fonction de divers scénarii. Cette énergie est l'énergie en sortie de l'étage de conversion électromécanique et ne tient pas compte de la gestion électrique, nécessaire au fonctionnement de la structure. **Le rendement maximal de cet étage de conversion est de 40%. Les valeurs de densité d'énergie récupérée sont très intéressantes même si dans la pratique, il est difficile d'atteindre la limite théorique haute de 3.2 J.g^{-1}.**

Ces polymères ont une densité d'énergie maximale largement supérieure à celle des polymères piézoélectriques (30mJ.cm^{-3}) et les polymères électrostrictifs (0,3J.cm^{-3}). Toutefois, ils nécessitent une tension de polarisation pour amorcer le cycle de récupération qui pourra être réalisée par un éléments actif type piézoélectrique. Les solutions seront donc des solutions hybrides.

Il est à noter que ce modèle est avant tout une méthode qui peut tout à fait s'adapter à d'autres polymères diélectriques. Il suffit pour cela, de connaître les caractéristiques du polymère : loi de comportement, constante diélectrique et zone de rupture.

Enfin, une série d'expériences corroborent et valident le modèle mis en place sur des structures simples types membranes en déformations biaxiales.

Beaucoup de points sont encore en cours d'étude et demande un approfondissement :

- réalisation et caractérisation des multicouches
- miniaturisation du dispositif
- création de la tension de polarisation

Chapitre 4 : Application aux mouvements du corps humain

Ce chapitre est consacré au développement d'une application novatrice : récupérer l'énergie mécanique perdue par le corps humain.

En premier lieu, nous déterminons la localisation optimale pour notre dispositif. Puis, nous réalisons un dimensionnement du générateur en réponse à un cahier des charges que nous nous fixons.
Ce prototype est caractérisé sur banc de test puis in situ. Enfin, la gestion électrique du dispositif sera amorcée.

4.1 Choix de la zone optimale

Nous avons choisi de développer une application récupératrice d'énergie au sein des vêtements soit un système de conversion en électricité des mouvements mécaniques lents du corps humain, pour alimenter un capteur basse consommation, typiquement 100µW.

En effet, ces dernières années, les textiles intelligents se développent de plus en plus : capteur de rythme cardiaque inséré dans un t-shirt, clavier de téléphone inséré dans la manche d'un manteau… La figure 4.1 relate quelques exemples de vêtements intelligents.

Sensatex Westcomb Uranium jeans

Figure 4.1 : Exemple de vêtements intelligents

Toutefois, les dispositifs de la figure 4.1 sont dépendants d'une source d'alimentation type pile ou batterie ce qui induit essentiellement une autonomie limitée, un changement fréquent de l'alimentation. Une solution prometteuse pour palier à ce problème est la récupération de l'énergie dissipée par le corps humain.

4.1.1 Energie dissipée par le corps humain

De nombreuses études ont estimé l'énergie dissipée par le corps humain **[POU 2004]** (figure 4.2).

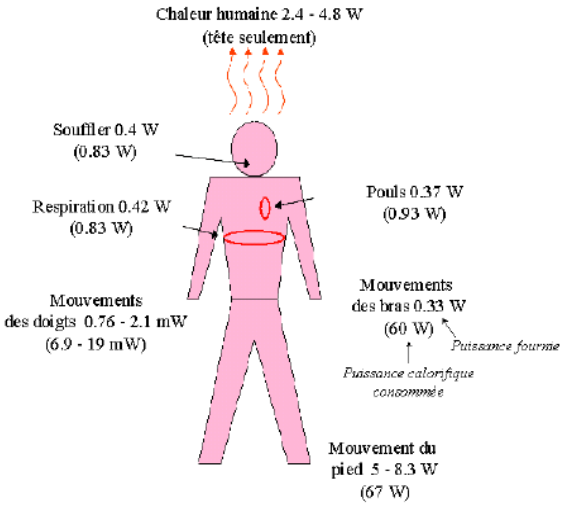


Figure 4.2 : Energie dissipée par le corps humain [POU 2004]

Cette énergie essentiellement thermique et mécanique peut être considérée comme source d'entrée pour un système récupérateur d'énergie. Plusieurs équipes ont développé des solutions pour exploiter cette énergie perdue. Au niveau de la conversion thermoélectrique, des solutions basées sur des

thermocouples tissés ont vu le jour. Pour une surface de 3.5cm², les thermocouples permettent de récupérer 0.4µW pour un gradient thermique de 5°C et 82µW pour un gradient thermique de 80°C. L'énergie récupérée en utilisation normale (5°C) est très faible **[NAV 2007]**. D'autres solutions non tissées existent aussi tels les générateurs thermoélectriques insérés dans un bandeau à cheveux récupérant au maximum 0.03mW.cm^{-2}, ou au sein d'un bracelet générant actuellement 20µW.cm^{-2} **[LEO 2007]**. Mais ces solutions sont dépendantes de l'utilisation de matériaux exotiques chers.

En ce qui concerne l'énergie mécanique, il existe quelques structures récupérant l'énergie mécanique au niveau du corps humain dont les principales sont représentées sur la figure 4.3.

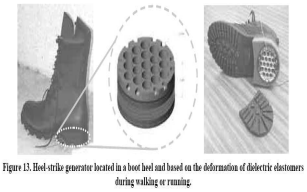
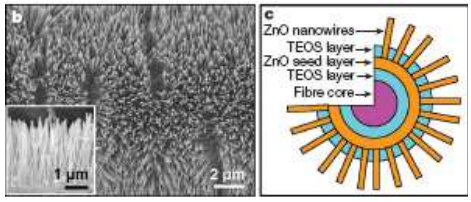


Figure 13. Heel-strike generator located in a boot heel and based on the deformation of dielectric elastomers during walking or running.

Générateur diélectrique embarqué dans le talon (SRI Int)

Dynamo sur le genou (U. of Michigan)



Nanofil pour la recuperation d'énergie (Georgia Tech)

Figure 4.3 : Dispositifs de récupération d'énergie mécanique d'origine humaine

Aux structures de la figure 4.3 s'ajoutent des structures à base de matériaux piézoélectriques insérés dans le talon d'une chaussure, de fibres piézoélectriques tissées, de sac à dos ou ceinture dynamométriques.
Toutefois, toutes ces structures ont un inconvénient de taille pour une utilisation de masse : les solutions insérées dans le talon d'une chaussure sont localisées loin du capteur et nécessitent ainsi une connectique importante, les solutions dynamométriques (genou et sac à dos) sont beaucoup trop lourdes (1,6kg par genou) et les solutions à base de nanofils ou à base de fibres piézoélectriques développent des signaux électriques beaucoup trop faibles.

Notons qu'il existe aussi des structures « in situ » c'est-à-dire à l'intérieur du corps humain (figure 4.4). Ces structures, basées sur une conversion électromécanique ou électrochimique, sont prometteuses mais répondent à un cahier des charges différent du notre et ciblent essentiellement des applications médicales.

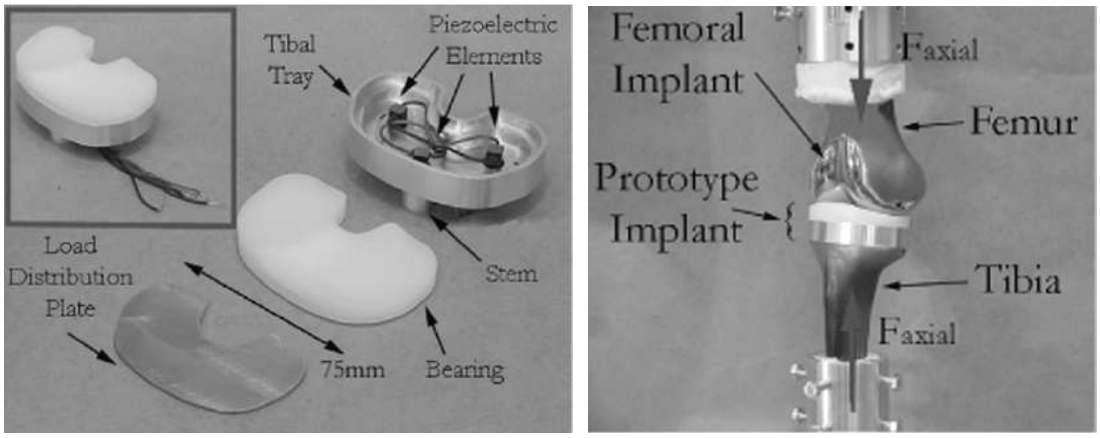


Figure 4.4 : Générateurs in situ [PLA 2005]

Ainsi, l'objectif de cette étude est de développer un système récupérateur d'énergie flexible, léger et proche de l'application. Au vu de la figure 4.2, les plus importantes sources mécaniques sont situées au niveau des articulations et du pied. Ce constat établi, nous avons décidé de convertir l'énergie des déformations occasionnées par la marche au niveau du genou, grâce à un système à base de polymères diélectriques.

4.1.2 Marche humaine et course

Nous souhaitons utiliser le mouvement du genou comme source mécanique d'entrée pour notre dispositif de récupération d'énergie. Grâce à la biomécanique, le mouvement du genou lors de la marche est déterminé, en particulier par l'angle α de rotation de la rotule au cours du cycle de marche (figure 4.5).

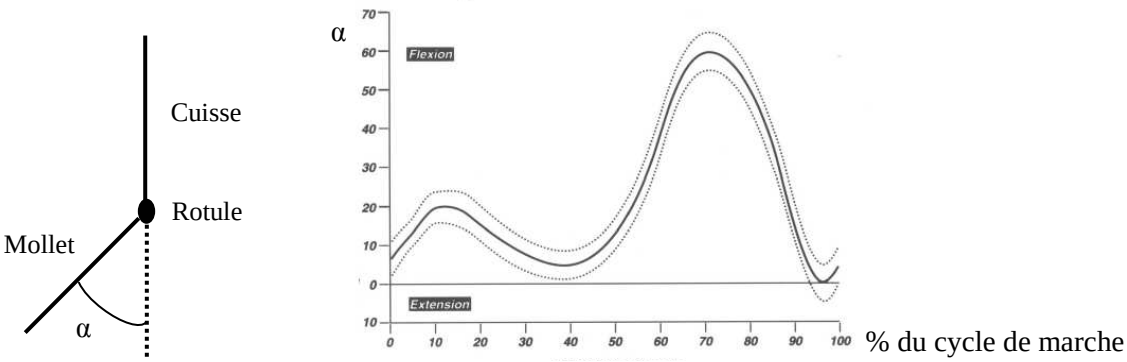


Figure 4.5 : Cinématique articulaire du genou lors de la marche [VIE 1999]

Sur la figure 4.5, l'angle α au niveau de la rotule varie entre 5° et 60° pour un cycle de marche. Ce même angle varie entre 5° et 120° lorsque le sujet court. Chez un sujet adulte mâle, la cadence de la marche est de 80 pas par minute et de 120 pas par minute pour la course.

Grâce à ces informations, la source mécanique d'entrée peut être déterminée. L'annexe 6 détaille le processus de marche et de course humaine.

4.2 Dimensionnement du générateur

4.2.1 Choix de l'emplacement et de la forme du dispositif

Le dispositif récupérateur d'énergie mécanique est disposé au niveau du genou pour convertir en électricité les mouvements mécaniques lors de la marche. Dans un premier temps, ce dispositif est un patch extérieur placé sur une genouillère (figure 4.6). Puis, nous envisagerons l'intégration de ce patch au sein même de la genouillère soit une solution textile tissée.

Figure 4.6 : Genouillère sur laquelle sera implanté le patch récupérateur

Ce patch extérieur est composé du polymère diélectrique 3M VHB 4910 ou 4905 pris en sandwich entre deux électrodes (Circuit Work 7100) et ayant une forme particulière permettant une conversion électromécanique optimale. Ce patch doit être suffisamment flexible et léger pour contraindre le moins

possible le mouvement du genou et ainsi ne pas ou très peu augmenter la dépense énergétique liée à la marche : récupération quasi-opportuniste.

De plus, ce patch doit pouvoir récupérer 100µJ par cycle de marche du sujet. Son cycle de fonctionnement normal est opéré lors de la marche du sujet, mais ce patch doit pouvoir fonctionner dans des conditions particulières telles que la montée d'un escalier, une marche rapide. Ce patch est donc modulable en termes de niveaux de déformations subies et de fréquences de fonctionnements imposées par les mouvements mécaniques.

Au vu des déformations au niveau du genou, trois positions peuvent être envisagées pour ce patch :

- devant, sur la rotule
- derrière le genou
- sur le côté

Pour maximiser les déformations subies par le patch, et pour minimiser les perturbations « extérieures » tel l'impact de la rotule sur le patch si celui-ci est placé devant, le générateur sera placé derrière le genou (figure 4.7).

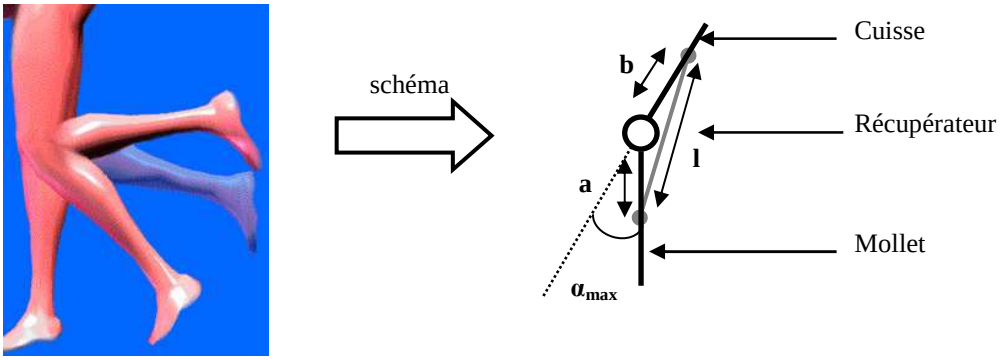


Figure 4.7 : Localisation du patch générateur

Par une série d'observations expérimentales simples, les déformations subies par le patch localisé derrière le genou, au cours d'un cycle de marche, sont essentiellement une variation de sa longueur l (figure 4.7). La largeur du patch reste constante. Ainsi, la déformation active est de type « pure shear » (figure 3.2).

Sur la figure 4.7, à partir des variations de l'angle (α) au niveau de la rotule, les variations de la longueur l peuvent être estimées en fonction de sa position derrière le genou (centrée ou non). Le rapport des longueurs minimale l_{min} et maximale l_{max} peut être exprimé en fonction de l'angle α et des distances a et b (équation 77).

$$\left(\frac{l_{\max}}{l_{\min}}\right)^2 = \frac{a^2 + b^2 - 2ab\cos(\pi - \alpha_{\min})}{a^2 + b^2 + 2ab\cos(\pi - \alpha_{\max})} \tag{77}$$

On émet l'hypothèse que la variable *a* s'exprime en fonction de la variable *b* (équation 78).

$$a = \left(1 + \frac{M}{10}\right)b \tag{78}$$

avec

M variant de 1 à 10

La figure 4.8 trace le rapport de longueur $\left(\frac{l_{\max}}{l_{\min}}\right)^2$ en fonction du paramètre *M*.

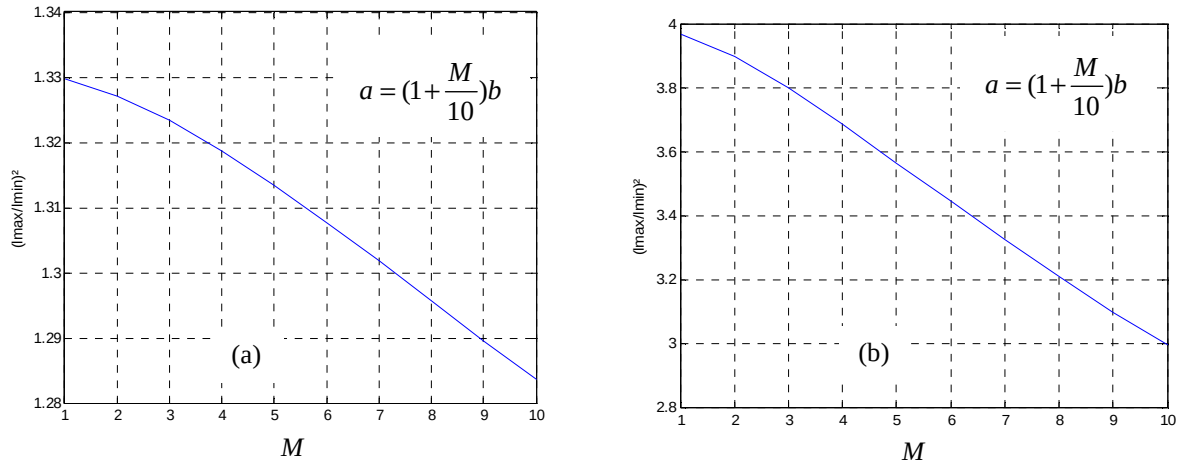


Figure 4.8 : Evolution du rapport de longueur en fonction du paramètre M pour la marche (a) et pour la course (b)

Au vu de la figure 4.8, plus le patch est décentré vers le mollet (*M* élevé) et plus la variation de longueur chute. La même étude a été effectuée pour un patch décentré vers la cuisse. Le résultat est identique : plus le patch est décentré vers la cuisse et plus la variation chute.

<u>Conclusion :</u> Le patch est centré derrière le genou (*a=b*). La longueur l varie donc de 15% lors d'un cycle en marche et de 99% lors d'un cycle en course. Afin de tirer le meilleur profit du polymère 3M VHB 4910 ou 4905, celui-ci doit être utilisé en grande déformation. Or, avec une valeur de déformation de 15% lors d'un cycle en marche, l'utilisation optimale du polymère n'est pas atteinte.

Pour concentrer et augmenter les déformations au sein de la zone active, le patch est composé d'une zone passive non déformable et d'une zone active déformable (figure 4.8).

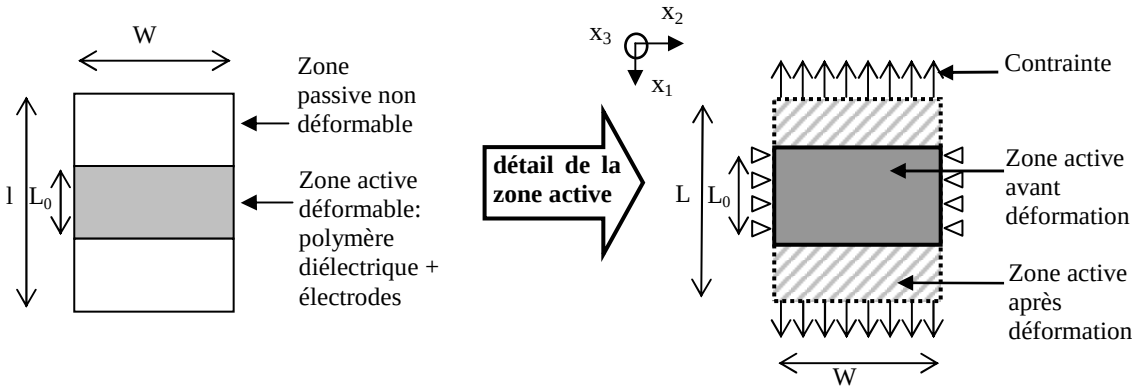


Figure 4.8 : Forme du patch et déformation active

La zone passive de la figure 4.8 doit permettre d'augmenter la valeur de déformation au sein de la zone active. Soit *m* le rapport de longueur entre zone passive et zone active, les variations de longueur de la zone active (L_{0max}/L_{0min}) sont fonction de ce paramètre (tableau 4.1).

m	1	2	3	4	5
L_{0max}/L_{0min}	1,307	1,46	1,614	1,768	1,9216

Tableau 4.1 : Variation de longueur L_O en fonction de la taille de la zone passive

D'après les calculs récapitulés dans le tableau 4.1, plus on augmente la taille de la zone passive, et plus la zone active est sujette à de grandes déformations, mais plus la force nécessaire pour déformer le patch est importante. Une des spécifications est de limiter la valeur de cette force afin d'être en récupération d'énergie quasi opportuniste. Ainsi, la force utile aura une valeur proche de 1N. Ce critère sur la valeur de la force englobe les solutions pour m variant de 1 à 4 (tableau 4.1). Et celui sur les grandes déformations au sein de la zone active, réduit ces solutions aux solutions pour m variant de 2 à 4.

<u>Conclusion :</u> Le meilleur compromis est une zone passive deux à quatre fois plus grande que la zone active ce qui permet d'obtenir une déformation de la zone active de 50% à 75% lors de la marche. On se rapproche du comportement optimal du polymère diélectrique en grandes déformations et les forces mises en jeu pour étirer la structure restent faibles (récupération quasi opportuniste).

4.2.2 Etude théorique

La déformation active est une déformation « pure shear », révélée par une série d'observations expérimentales. Une phase de pré-déformation est ajoutée au cycle principal afin de diminuer la tension de polarisation. Le cycle générateur (figure 2.3) est traduit avec les déformations propres à cette application (figure 4.9).

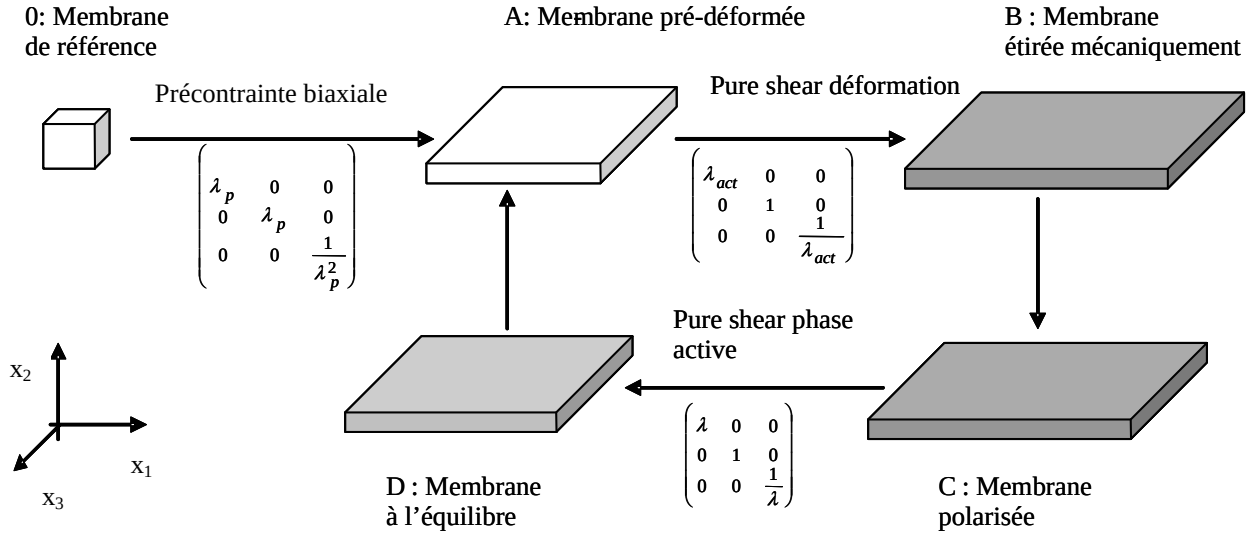


Figure 4.9 : Cycle générateur pour l'application au niveau du genou

Seule la zone active est représentée sur le cycle de la figure 4.9. Nous émettons l'hypothèse que le genou applique une force sur la structure pour l'étirer (phase A à B de la figure 4.9). Mais, lors de la phase active (C à D de la figure 4.9), le genou est dans un mouvement frein et n'applique plus de force à la structure qui est alors en fonctionnement libre.

La démarche de modélisation développée au chapitre 3 est mise en application. Chaque phase du cycle de la figure 4.9 est modélisée. Ainsi, la phase active du cycle de la figure 4.9 est gouvernée par l'équation du mouvement selon l'axe x écrite en loi 79.

$$m\frac{\partial^2 \lambda}{\partial t^2} = f_{Maxwell} + f_{élastique} + f_{précontra\,int\,e} + f_{poids} \tag{79}$$

En tenant compte des sollicitations passées et des conditions aux limites imposées par cette application, l'équation du mouvement pour la phase active est donnée par l'équation 80.

$$m\frac{\partial^2\lambda}{\partial t^2}=\frac{y_0 z_0}{\lambda_p x_0}[-4(\breve{C}_{10}^R+\breve{C}_{20}^R)(\lambda_p\lambda+\frac{1}{\lambda_p^3\lambda^3})-f_{pp}+\frac{Q^2 z_0}{\varepsilon_0\varepsilon_r y_0 x_0^2\lambda_p^4\lambda^3}+\frac{z_0 mg}{\lambda^2 x_0} \quad (80)$$

Le premier terme de l'équation 80 correspond à la force élastique développée par le polymère, le second terme est la force électrique dite force de Maxwell et le dernier terme est le poids du patch.

Cette équation est résolue par la méthode de Runge Kutta d'ordre 4, qui nous renseigne sur la valeur du coefficient d'extension au point D de la figure 4.9. A partir de cette donnée et du schéma électrique équivalent, l'énergie récupérable est calculable.

4.2.3 Spécification du prototype

4.2.3.1 Détermination des principales caractéristiques du prototype

Un homme français « standard » mesure 1,75m pour 60kg. Son tour de cuisse est de 54cm et son tour de mollet est de 37cm. A partir de ces données, l'encombrement maximal pour le patch générateur placé derrière le genou est estimé à 7cmx10cm en surface. La largeur totale est limitée à 7cm, mais celle de la zone active sera au maximum de 5cm pour permettre une attache sur un support flexible. L'épaisseur est très faible aux regards de ces dimensions et n'est donc pas un paramètre limitant pour le dimensionnement du générateur.

Outre l'encombrement maximal, un critère primordial est le niveau d'énergie récupérable. On souhaite récupérer au minimum 100µJ par cycle lorsque le sujet marche (1Hz) avec un patch aussi petit que possible et une tension de polarisation inférieure à 300V. En effet, une puissance de 100µW est suffisante pour alimenter un microsystème autonome type capteur par exemple.

Le critère sur la tension de polarisation tend à diminuer au maximum cette grandeur car il est difficile à l'heure actuelle de réaliser une gestion électrique compétitive et intégrable sous de hauts seuils de tension. En effet, la plupart des applications type capteur ont des alimentations plutôt de l'ordre de 5-10V. L'énergie récupérée doit donc être transformée et stockée avant d'être utilisée. Cette gestion de l'énergie comporte un étage de puissance et un étage de commande. L'étage de puissance réalisant la conversion des signaux électriques de sortie doit utiliser des composants fonctionnant sous haute tension ou des transformateurs pour abaisser les signaux de sortie. Plus la tension augmente, plus on peut estimer que les pertes liées à cet étage augmentent (perte par commutation, perte dans le transformateur…). De plus, même si il n'y aucun danger (puissance faible), l'utilisateur de ce patch peut être hésitant vis-à-vis de ce seuil de tension élevée. Ainsi, pour cette application au niveau du genou, la tension de polarisation est limitée à 300V (valeur choisie arbitrairement). Pour les applications futures, la tension pourra être réduite grâce à un système de multicouches.

A partir du tableau 4.1 et pour un encombrement de 7x10cm, plusieurs tailles de patch sont réalisables afin de respecter les critères énoncés ci-dessus en terme d'énergie récupérable et de tension de polarisation. La taille minimale pour la zone active est donnée par le patch A et la taille maximale est donnée par le patch B. Les niveaux de déformations actives et de pré-déformations sont différents pour les deux patchs envisagés et sont regroupés au sein du tableau 4.2. Nous avons choisi une déformation totale λ_{tot}^2 de 25 pour éviter toute rupture mécanique ($\lambda_{tot}^2 \leq 36$).

		A	B
Aire active	**cm²**	2x5	3x5
Aire passive	**cm²**	8x5	6x5
Aire totale	**cm²**	10x5	9x5
Epaisseur	**µm**	40	31
Prédéformation	λ_p	3,75	4
Déformation active marche	λ_{act}	1,75	1,5
Polymère		4905	4905
Température	**°C**	20	20
Constante diélectrique	**ε'**	4,7	4,6
Facteur de pertes	**ε''**	0,045	0,05
Résistance volumique	R_p	150	110
Résistance surfacique	R_s	3	3

Tableau 4.2 : Taille des patchs réalisables

La solution A est plus petite mais se déforme plus que la solution B. Le meilleur compromis est la solution capable de récupérer le plus d'énergie électrique et de respecter les contraintes énumérées au début de ce paragraphe.

L'énergie récupérable en fonction de la tension de polarisation avec les deux patchs A et B pour un cycle à tension V constante et pour un cycle à charge Q constante est tracée sur la figure 4.10.

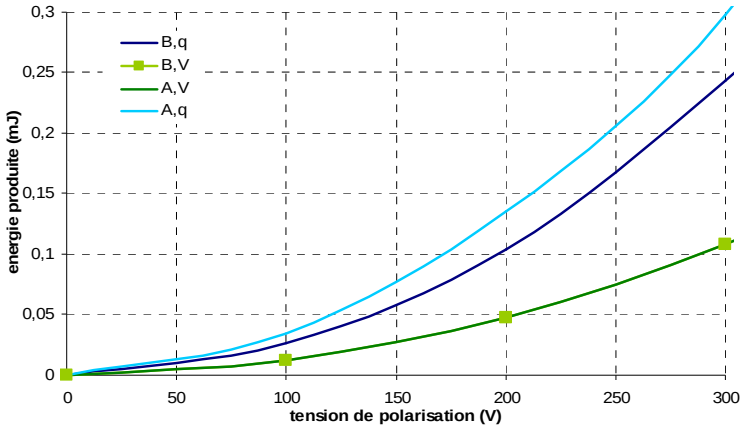


Figure 4.10 : Energie récupérable avec les deux patchs A et B

Sur la figure 4.10, pour un cycle à tension V constante, les deux patchs récupèrent sensiblement la même énergie. Les variations de capacités générées par les structures A et B sont maximales sous de si

faibles tensions et donc proches l'une de l'autre. Notre objectif de 100µJ est atteint sous une tension de polarisation de 280V.

Pour un cycle à charge Q constante, le patch A plus petit qui se déforme plus récupère plus d'énergie que le patch B plus grand et moins déformable. Le patch A récupère 100µJ sous 170V, alors que le patch B récupère la même énergie sous 195V, soit une tension 15% plus élevée. Cette différence de tension de polarisation est faible mais à prendre en compte vu qu'un de nos critères majeurs est une tension de polarisation la plus faible possible.

Toutefois, un autre critère à ne pas oublier est que la force nécessaire pour étirer mécaniquement le polymère doit être la plus faible possible pour ne pas créer un effort supplémentaire chez le sujet lors de la marche. Avec la structure B, il faut développer 1,075N pour étirer mécaniquement le polymère lors de la marche et avec la structure A, il faut fournir 1,2N pour étirer le polymère durant la marche. Ainsi, avec la structure A, le corps doit fournir 20% d'effort en plus pour récupérer le même seuil d'énergie qu'avec la structure B (100µJ) sous une tension de polarisation 15% plus faible qu'avec la structure B.

<u>Conclusion :</u> La structure B est choisie pour l'application macroscopique de récupération d'énergie au niveau du genou, soit un patch ayant une zone active de 3x5cm².

4.2.3.2 Zone de fonctionnement du prototype

Le prototype est un patch ayant une zone active de 3x5cm² dont les principales caractéristiques électriques sont récapitulées au sein du tableau 4.2 (structure B).

Grâce aux caractéristiques réalisées au chapitre 2, nous pouvons déterminer la zone de fonctionnement du prototype. Ainsi, ce dernier peut fonctionner de 0°C à 100°C et pour des fréquences inférieures à 10Hz. La déformation active maximale que peut subir le prototype est de 125% (rupture mécanique) et la tension maximale applicable à la structure est de 1400V (tension de claquage). Selon nos spécifications, lors de la marche humaine, le prototype se déforme de 50%, avec une tension de polarisation inférieure à 300V. Les ruptures mécaniques et électriques ne peuvent perturber le fonctionnement du prototype. De plus, avec de telles marges de sécurité, la structure peut encaisser plus facilement une perturbation extérieure ou un cycle de fonctionnement anormal (montée de marches, marche à allure vive).

<u>Conclusion :</u> La zone de fonctionnement du prototype est limitée en température et en fréquence mais convient parfaitement pour une application de récupération d'énergie lors de la marche humaine.

4.3 Résultats expérimentaux

4.3.1 Réalisation du prototype

Le prototype est fabriqué selon le même principe qu'au paragraphe 3.3.1 du chapitre 3. Le polymère 3M VHB 4905 est utilisé pour cette application. Il est précontraint avec une pré-déformation surfacique de 16 ($\lambda_p^2 = 16$). Une fois la relaxation terminée (30min), le polymère est pris en sandwich ente deux supports flexibles autorisant au moins un degré de liberté en translation selon une direction privilégiée du plan. Enfin, les électrodes en graisse conductrice d'argent (Circuit Work 7100) sont déposées manuellement sur le polymère. Des petits connecteurs en aluminium assurent le contact électrique entre le dispositif récupérateur et le circuit électrique.

4.3.2 Mesures au repos

4.3.2.1 Caractéristiques du générateur

Nous présentons les caractéristiques obtenues pour trois prototypes. Pour chacun, la capacité développée par la structure et la résistance de surface sont mesurées lorsque la structure passe du repos (point A de la figure 4.9) à la phase étirée (point B de la figure 4.9). Le tableau 4.4 relate ces variations.

		1	**2**	**3**
Capacité en A	**nF**	1,87	2,08	1,78
Capacité en B	**nF**	4,1	4,2	3,55
$\mathbf{C_B/C_A}$		2,19	2,02	1,99
Résistance surfacique en A	**Ω**	1,4	1,3	3
Résistance surfacique en B	**Ω**	1,7	1,9	3,9
$\mathbf{R_B/R_A}$		1,21	1,46	1,30

Tableau 4.4 : Caractéristiques des trois prototypes

Le rapport de capacité (C_B/C_A) générée par les trois prototypes est inférieur au rapport de capacité théorique qui est de 2,21. L'écart relatif reste inférieur à 10%, ce qui est tolérable au vu de la réalisation manuelle des prototypes.

La résistance de surface entre les deux états augmente entre 20% et 45% selon les prototypes testés. Les pertes liées au courant de fuite par surface augmentent donc aussi. Cette augmentation reste faible mais est à noter.

<u>Conclusion :</u> Les prototypes réalisés développent une variation de capacité de 2 avec une électrode de surface faible.

<u>Remarque :</u> La résistance volumique des prototypes réalisés est supérieure à 1GΩ assurant ainsi une constante de temps électrique importante.

4.3.2.2 Evaluation de la force utile

Sur les prototypes réalisés et testés au paragraphe précédent, la force mécanique nécessaire pour passer de l'état de repos (point A sur la figure 4.9) à l'état étiré (point B sur la figure 4.9) a été mesurée. La valeur moyenne de cette force est de 1,23N. Selon le modèle analytique, cette force devrait être de 1,075N, soit une différence de 20%. Cette différence s'explique par la prise en compte expérimentale du support qui freine un peu le mouvement du polymère 3M VHB 4905 seul. En effet, dans le modèle analytique, le support est supposé ne pas affecter le comportement du polymère. Cette hypothèse forte n'est pas tout à fait valide, mais néanmoins ne donne pas de résultats trop erronés pour un dispositif à une couche de polymère diélectrique.

4.3.2.3 Tension de claquage pour le polymère 3M VHB 4905

Les tensions de claquages diélectriques pour le polymère 3M VHB 4905 en fonction de son épaisseur sont mesurées sur cinq échantillons autres que nos trois prototypes, selon le même protocole que les mesures réalisées au chapitre 2.

Pour un polymère 3M VHB 4905 précontraint de 9 en surface soit ayant une épaisseur de 56µm, la tension de claquage mesurée est en moyenne de 3000V. Et, pour un polymère 3M VHB 4905 précontraint de 16 en surface soit ayant une épaisseur de 31µm, la tension de claquage est en moyenne de 2000V.

Conclusion : Ces valeurs de tension et champ de claquage sont plus faibles que celles que l'on pouvait escomptées [PLA 2006] [WIS 2007]. Ainsi, l'énergie maximale récupérable avec une telle structure chute. Toutefois, notre utilisation n'en pâtira pas puisque nous sollicitons la structure sous des tensions bien inférieures à la tension de claquage.

4.3.3 Mesures lors de cycles générateurs

4.3.3.1 Circuit électrique de test

Un circuit électrique est réalisé pour tester notre dispositif, déterminer les signaux de sortie et l'énergie produite. Toutefois, les bilans globaux d'énergie ne peuvent être effectués avec ce circuit. En effet, lors de la charge de la structure, la source fournit une énergie E dont seulement la moitié sert à charger la capacité variable de notre dispositif. Le bilan énergétique global n'est alors pas un bilan favorable mais ce circuit permet de vérifier que le fonctionnement de la structure est correct et que les seuils d'énergie produite sont conformes aux prédictions du modèle analytique. Une gestion électrique globale sera amorcée au paragraphe 4.4.

Le circuit de la figure 4.12 est le circuit utilisé pour les premiers tests.

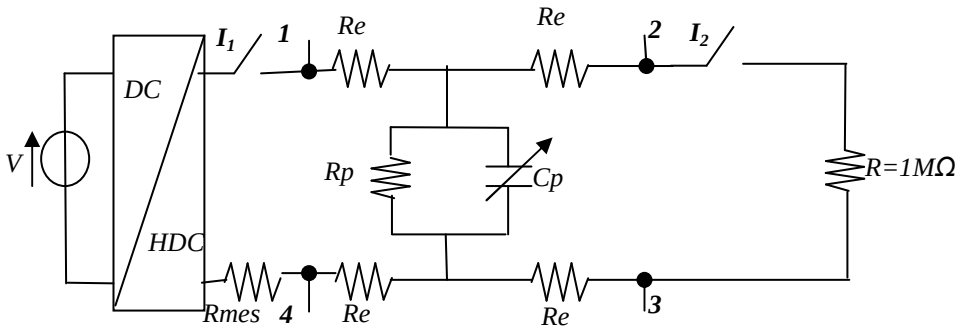


Figure 4.12 : Circuit électrique de mesures des performances du dispositif

Comme au chapitre 3, un module DC/HDC de chez Emco nous fournit une haute tension de 300V.
Le circuit de la figure 4.12 assure la charge et la décharge de la capacité variable C_p à des moments opportuns grâce aux interrupteurs I_1 et I_2. Des cycles à tension V constante et des cycles à charge Q constante sont réalisés (tableau 4.3).

	Interrupteur	***A-B***	***B-C***	***C-D***	***D***
Cycle à tension constante V	***I1***	ouvert	fermé	fermé	fermé
	I2	ouvert	ouvert	fermé	fermé
Cycle à charge constante q	***I1***	ouvert	fermé	ouvert	fermé
	I2	ouvert	ouvert	ouvert	fermé
		Déformation mécanique	**Charge**	**Phase active**	**Décharge**

Tableau 4.3 : Séquence des interrupteurs I_1 et I_2 pour réaliser les différents cycles récupérateur

4.3.3.2 Signaux électriques caractéristiques du prototype

Les signaux électriques théoriques pour un cycle à tension constante sont tracés sur la figure 4.13, et ceux pour un cycle à charge constante sur la figure 4.14.

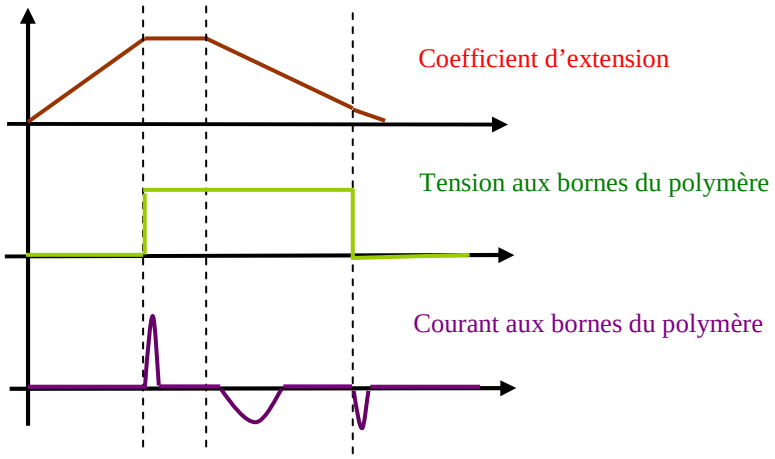


Figure 4.13 : Signaux électriques théoriques pour un cycle à tension constante

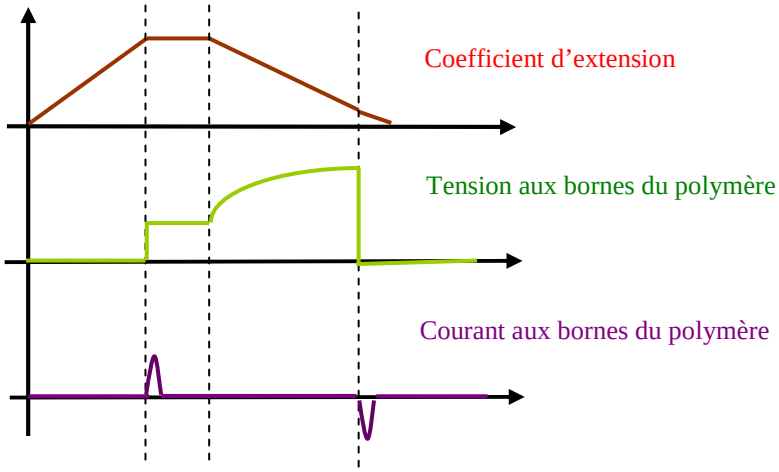


Figure 4.14 : Signaux électriques théoriques pour un cycle à charge constante

Expérimentalement, les signaux électriques (tension et courant) sont relevés. La figure 4.15 trace les signaux relevés pour un cycle à tension V constante et la figure 4.16, ceux pour un cycle à charge Q constante.

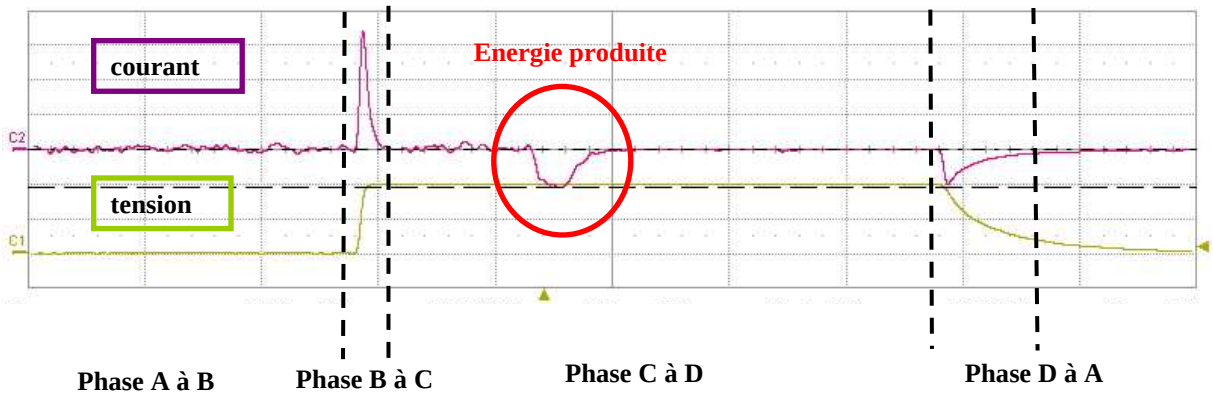


Figure 4.15 : Signaux électriques relevés pour un cycle à tension électrique constante

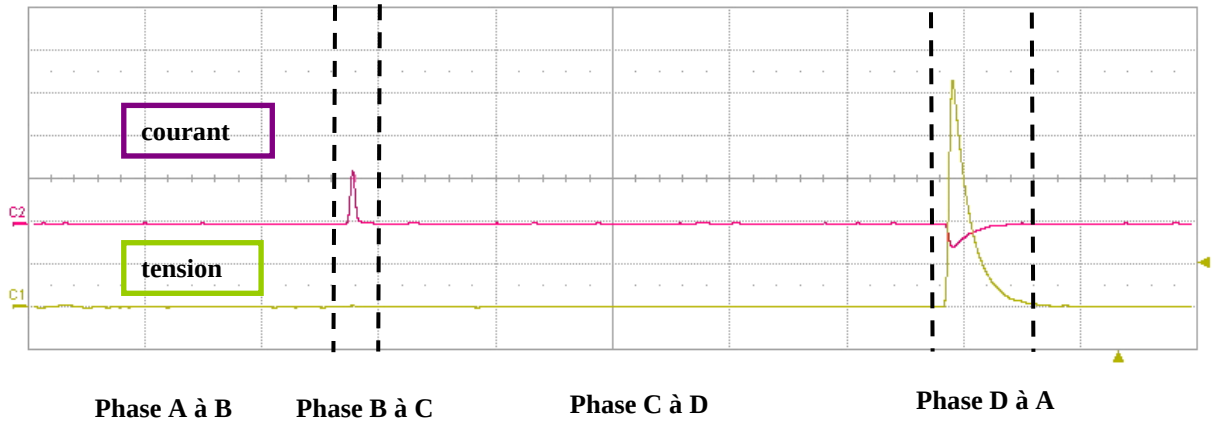


Figure 4.16 : Signaux électriques relevés pour un cycle à charge électrique constante

Sur la figure 4.15 et 4.16 sont tracés en violet le courant mesuré grâce à R_{mes}, et en vert la tension mesurée entre les points C et D de la figure 3.18. Les quatre phases du cycle générateur décrit à la figure 2.3 peuvent être replacées au sien de ce relevé de signaux électriques.

Par exemple, pour un cycle à tension constante, lors de la phase A à B, le polymère est étiré mécaniquement : il n'y a aucun signal électrique. La phase B à C, le polymère est chargé : la tension augmente de 0 à une valeur de polarisation V et le courant dérivé de la tension effectue un pic positif. La phase C à D (phase active), le polymère bouge jusqu'à un état d'équilibre entre les contraintes mécanique et électrique : la tension reste constante et les charges au sein du polymère augmente soit création d'un courant négatif. La phase D à A est la suppression de la polarisation et le retour aux dimensions initiales : la tension chute de sa valeur V à zéro, et les charges injectées au polymère sont retransmises vers la source d'où un courant de valeur négative. Ces signaux correspondent parfaitement aux signaux théoriques espérés pour un tel cycle.

Pour un cycle à charge constante, on ne peut pas visualiser la tension lors de la phase active sinon la charge Q n'est pas maintenue constante. En effet, un circuit de décharge RC se forme entre la capacité variable du polymère et la résistance de la sonde de mesure de la tension. Ainsi, on ne visualise la tension que lors de la décharge (phase D à A de la figure 2.3). Le courant est mesuré pendant tous le cycle.

A partir de ces signaux, l'énergie électrique récupérable sera déterminée au paragraphe 4.3.4.

4.3.3.3 Détermination des temps caractéristiques

Nous choisissons un sujet adulte marchant à 1Hz. Le cycle générateur se cale sur les variations d'angle au niveau de la rotule (figure 4.17).

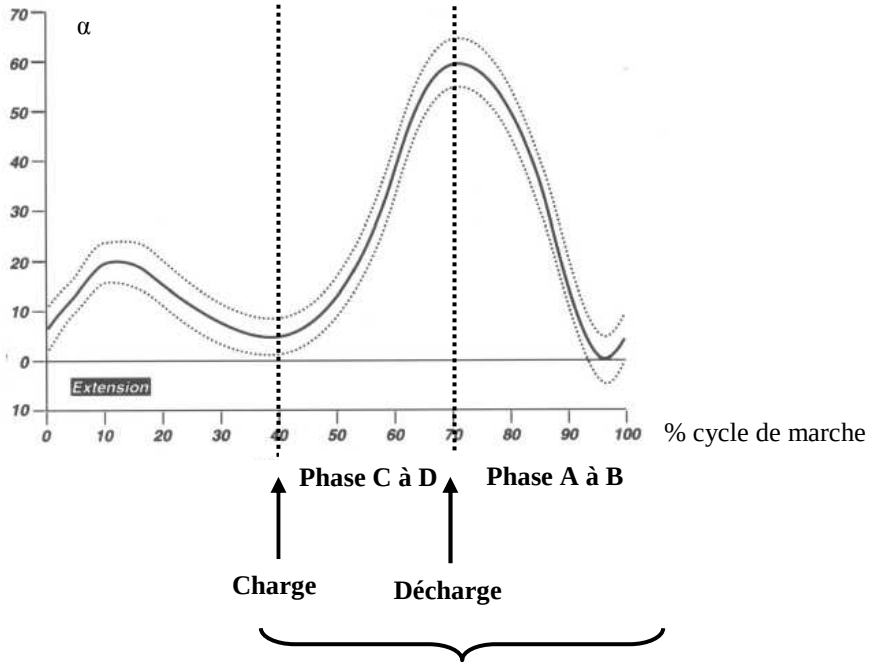


Figure 4.17 : Mise en concordance des cycles électriques et mécaniques

Lors d'un cycle de marche, deux variations s'opèrent au niveau du genou : une principale et une secondaire. Le dispositif est dimensionné pour récupérer les variations de longueur lors de la déformation principale (de 5 à 60°). Seulement 60% du cycle de marche est utilisé et la phase active doit s'opérer en moins de 300ms.

Pour les trois prototypes réalisés, les temps de charge, de décharge et la durée de la phase active sont mesurés. La durée de la phase active correspond au temps que met le prototype pour passer de son état étiré à son état d'équilibre, sans force extérieure. Ce temps de réponse mécanique, mesuré à 95% de la réponse finale, n'est alors pas influencé par le mouvement du genou mais seulement par les différentes constantes de relaxation s'opérant au sein du matériau. Le tableau 4.4 récapitule les valeurs moyennes.

			1	2	3	Moyenne
Temps de charge	**Cycle à V constante**	**ms**	129	97	75	100
	Cycle à q constante	**ms**	64	65	85	71
Temps de décharge	**Cycle à V constante**	**ms**	285	338	370	331
	Cycle à q constante	**ms**	329	383	350	354
Phase active		**ms**	248	279	300	276

Tableau 4.4 : Temps caractéristiques de la structure

Le temps de réponse mécanique à 95% lors de la phase active est 276ms et est influencé seulement par la première relaxation au sein du matériau. Ce temps de réponse est bien inférieur au 300ms imposée par le mouvement du genou, permettant ainsi de réaliser correctement les cycles générateurs.

Si ce temps de réponse avait été trop grand, nous aurions dû changer de structure et imposer une déformation moindre pour que le polymère revienne plus rapidement à son état d'origine. Or, avec une déformation moindre, l'énergie récupérée est plus faible, ce qui nous aurait sûrement contraint à des structures multicouches ou encore des structures localisées tout autour du genou et pas seulement derrière.

La constante de temps électrique (R_pC_p) vaut sensiblement 190s et, est bien supérieure à constante de temps mécanique (de l'ordre de 100ms). Ainsi, lors de la phase active pour un cycle à charge Q constante, les charges injectées au sein de la structure ne se dissiperont pas avant la fin du mouvement mécanique. Cette condition est primordiale.

Par contre, au vu du tableau 4.4, les temps de charge et de décharge mesurés sont beaucoup trop importants et non adaptés pour notre application. Toutefois, ces temps sont imposés par le module de conversion DC/HDC utilisé pour élever la tension de polarisation (figure 4.12). Ce circuit électrique est un circuit de test et non pas le module de gestion électrique final.

<u>Conclusion :</u> Les cycles électriques et mécaniques sont compatibles. La phase active s'opère en moins de 300ms, soit un temps de réponse mécanique faible par rapport à celui électrique. Toutefois, les temps de charge et de décharge sont importants. Ils devront être de l'ordre de 10ms avec le circuit de gestion électrique.

4.3.4 Expérience sur un banc de test

Un banc de test horizontal a été développé pour caractériser les structures récupératrices d'énergie mécanique. Le dispositif à tester, posé horizontalement, est fixe d'un côté et soumis à une force de l'autre pour simuler la déformation escomptée au niveau du genou.

4.3.4.1 Cycle à tension constante

La figure 4.18 présente les résultats obtenus pour un cycle à tension *V* constante sur le banc de test horizontal, pour les trois prototypes (1, 2 et 3).

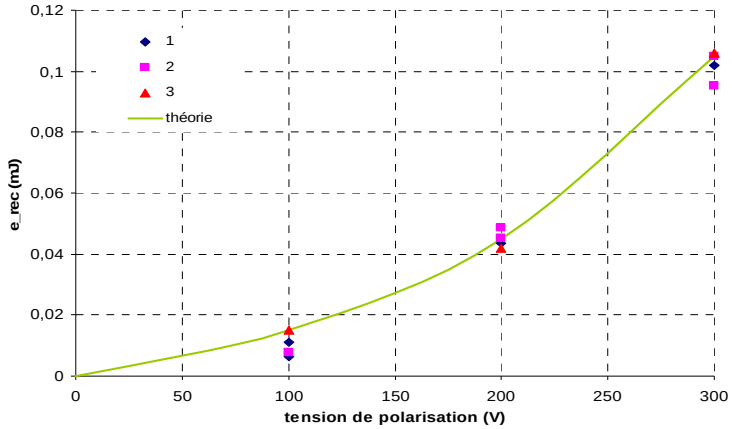


Figure 4.18 : Energie récupérée pour un cycle à tension constante

Sur la figure 4.18, les mesures expérimentales sont représentées par des points. La courbe verte correspond à notre modèle avec les constantes du matériau issues de nos caractérisations.

L'écart relatif entre mesures et théorie est inférieur à 10%. Cet écart s'explique par des variations de capacité générées pour les trois prototypes plus faibles que les variations théoriques, et par les imprécisions de mesures. Toutefois, cet écart reste faible et valide le modèle mis en place.

Pour un cycle à tension constante, une énergie de 100µJ est récupérable sous une tension de polarisation de 300V. Théoriquement ce seuil d'énergie est atteint sous 280V, soit une tension plus faible de 7,2%.

<u>Conclusion :</u> Les critères imposés sont respectés pour un cycle à tension constante : 100µJ sont récupérés sous 300V.

4.3.4.2 Cycle à charge constante

La figure 4.19 présente les résultats obtenus pour un cycle à charge Q constante sur le banc de test horizontal.

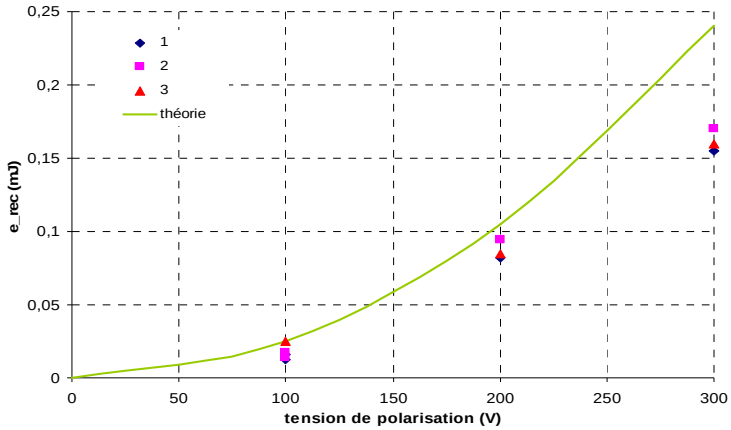


Figure 4.19 : Energie récupérée pour un cycle à charge constante

L'erreur relative entre mesures et théorie pour un cycle à charge Q constante est inférieure 35%. Cet écart est du à la fermeture de l'interrupteur I_2 pour la décharge de la structure entraînant des pertes de commutation. Cet écart est beaucoup plus important que celui pour un cycle à tension constante. En effet, pour un cycle à tension constante, l'interrupteur I_2 est toujours maintenu fermé et ne génère pas de pertes.

Pour un cycle à charge constante, une énergie de 100µJ est récupérable sous une tension de polarisation de 210V, soit une tension de polarisation environ 20% plus élevée que la tension estimée lors du dimensionnement du générateur.

<u>Conclusion :</u> Les critères imposés de tailles, seuils d'énergie et tension maximale de polarisation sont donc respectés pour un cycle à charge constante : 100µJ sous récupérée sous 210V environ. Le rendement à la décharge est compris entre 65% et 80%.

4.3.5 Expérience sur le genou

Une jambe a été réalisée à partir d'un squelette et de la mousse, de telle sorte que le tour de cuisse soit de 54cm et le tour de mollet soit de 37cm (figure 4.20).

Sur cette jambe est placée la genouillère avec le patch récupérateur (non représenté sur la figure 4.20). La cuisse est maintenue verticale et une force au niveau de la cheville nous permet de simuler la flexion du genou lors d'un cycle de marche ou de course. Le circuit de mesure est gardé tel quel et on réalise des cycles générateur à tension V constante et à charge Q constante comme décrit au sein du

tableau 3.5. De nouveaux prototypes sont réalisés avec une surface de 3x5cm et une épaisseur plus importante que celle prévue (40µm et 50µm) dû aux aléas de la fabrication manuelle.

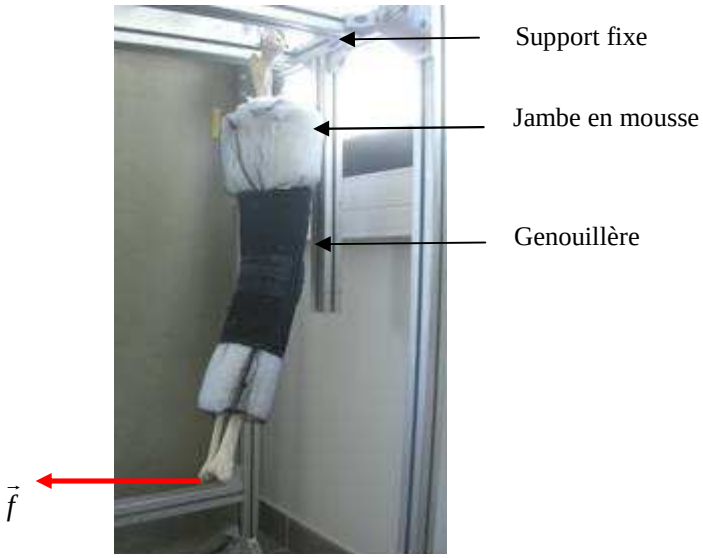


Figure 4.20 : Photo de la jambe pour les tests en situation

4.3.5.1 Cycle à tension constante

La figure 4.21 présente les résultats obtenus pour un cycle à tension constante sur deux prototypes (proto A et B) montés sur la genouillère de la figure 4.20. Pour une même tension de polarisation, plusieurs mesures ont été réalisées.

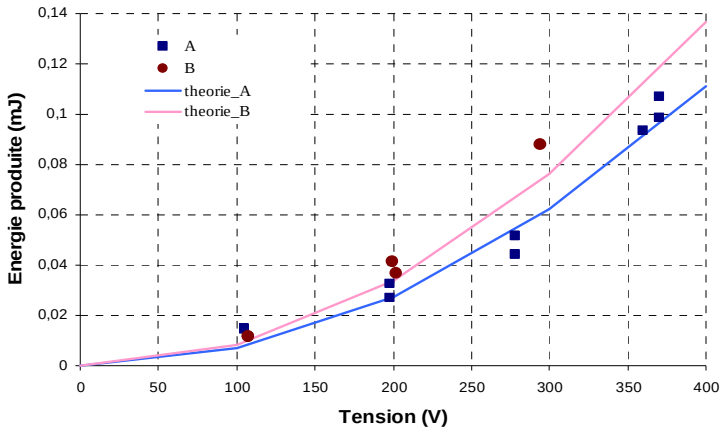


Figure 4.21 : Energie récupérée pour un cycle à tension constante

Sur la figure 4.21, les mesures expérimentales sont représentées par des points (rond ou carré). Sous une même tension de polarisation, il y a très peu de dispersion dans les mesures Les courbes bleu et rose correspondent à notre modèle avec les valeurs des constantes du matériau issues de nos caractérisations.

4.3.5.2 Cycle à charge constante

La figure 4.22 présente les résultats obtenus pour un cycle à charge constante sur deux prototypes montés sur la genouillère de la figure 4.20.

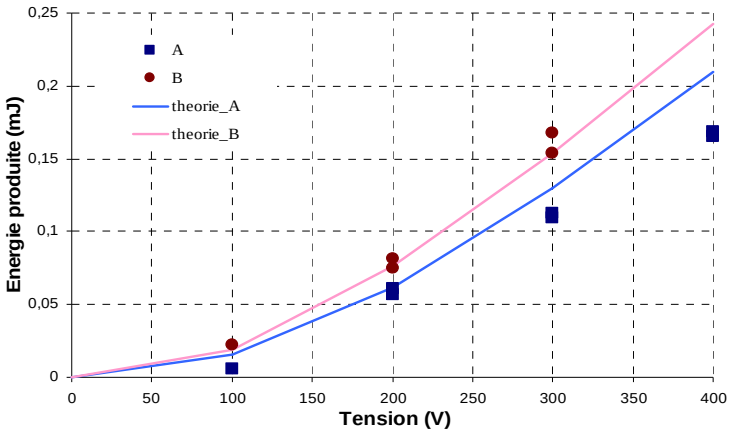


Figure 4.22 : Energie récupérée pour un cycle à charge constante

Sous une même tension de polarisation, il y a très peu de dispersion dans les mesures. Les courbes bleu et rose correspondent à notre modèle avec les valeurs des constantes issues de nos caractérisations.

Les mêmes remarques que précédemment peuvent être faites : peu de dispersion dans les mesures, erreur relative faible et peu d'impact des déformations parasites.

<u>Conclusion :</u> Les déformations parasites telle que la torsion, le cisaillement pouvant être présentes au niveau du genou, n'ont pas d'impact sur l'énergie électrique récupérable. En effet, la mesure prend en compte ces aspects, alors que la théorie les néglige et pourtant l'erreur relative entre mesure et expérience reste faible (5.5%).

4.3.6 Rendement de l'application

Nous pouvons réaliser deux types de cycles : un cycle à tension *V* constante ou un cycle à charge *Q* constante. Un cycle à tension *V* n'est énergétiquement pas rentable. En effet, l'énergie récupérée totale (énergie récupérée et énergie de décharge) est inférieure à l'énergie nécessaire pour réaliser la charge de la structure. Ce cycle ne peut être conservé pour une application de récupération d'énergie.

En ce qui concerne les cycles à charges *Q* constantes, ces derniers sont énergétiquement rentables et les rendements de conversion peuvent être calculés. La figure 4.23 présente les énergies théoriquement mises en jeu au cours d'un cycle à charge *Q* constante sans pertes à la charge et à la décharge. Les énergies sont estimées à partir des formules du paragraphe 3.1.2.4, pour une tension de polarisation de 195V et une force nécessaire pour déformer la structure de 50% de 1,075N.

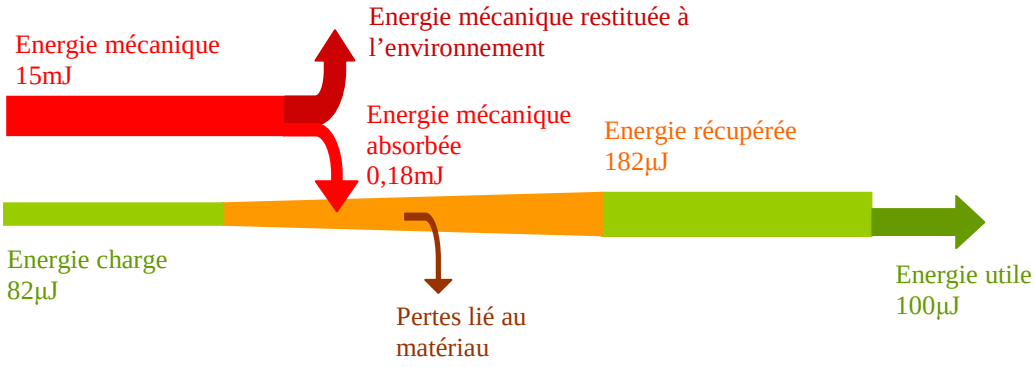


Figure 4.23 : Energie théoriquement mises en jeu

La figure 4.24 présente les énergies mises en jeu issues des mesures réalisées, avec une tension de polarisation de 220V, et une force nécessaire pour déformer de 50% la structure de 1,23N. Avec les premières mesures réalisées, les pertes à la décharge peuvent être estimées, mais pas les pertes à la charge.

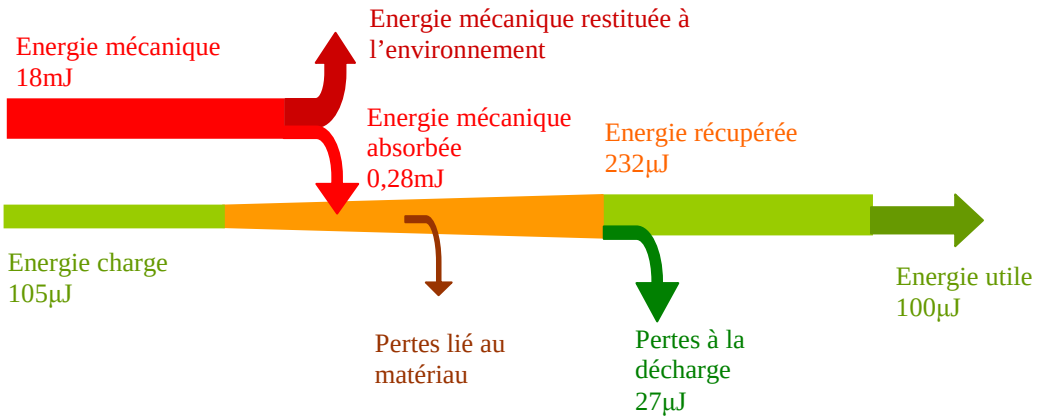


Figure 4.23 : Energie réellement mises en jeu

Le rendement final (entre l'énergie utile et l'énergie mécanique) obtenu est de 0,5% au lieu de 0,7% en théorie, soit une chute relative d'environ 30%. Cette chute s'explique par la prise en compte des pertes à la décharge de la structure. Toutefois, ces pertes ne sont pas minimisées et le rendement de décharge peut être amélioré.

L'énergie mécanique non absorbée par la structure n'est pas une énergie perdue mais une énergie restituée à l'environnement. Le rendement de la structure doit être calculé entre l'énergie utile et l'énergie mécanique absorbée. Ainsi, expérimentalement ce rendement est estimé à 35,7%, plus faible que le rendement théorique de 55%. La variation relative est de 35%, et s'explique aussi par la prise en compte des pertes à la décharge lors de l'expérimentation.

Remarque : Le fonctionnement de la structure n'est pas autonome car l'énergie nécessaire à la charge de la structure est fournie par une source extérieure. La gestion électrique doit permettre de boucler ce système (figure 3.6 chapitre 3).

Conclusion : Le rendement total de l'étage de conversion est acceptable (35,7%). Les pertes à la décharge ont été prises en compte mais pas celles à la charge. Au vu des faibles niveaux d'énergie mis en jeux, une gestion électrique efficace doit être mises en place afin de minimiser les pertes électriques associées à la charge et à la décharge de la structure.

4.3.7 Premier test en fatigue

Pour chacun des prototypes testés, le nombre de cycle maximal a été comptabilisé. Il est actuellement au maximum de 600 cycles.

Aucun des prototypes testés n'a subi de claquage diélectrique sous de si faibles tensions. Seule la rupture mécanique est à l'origine de ce nombre faible de cycles de fonctionnement.

En effet, le support flexible entourant le polymère engendre des défauts mécaniques locaux qui se propagent et créent une rupture mécanique. Ceci s'explique par la non régularité des bords, les prototypes étant réalisés manuellement. En automatisant le procédé de fabrication, ces défauts disparaîtraient, augmentant ainsi le nombre de cycles réalisables.

Notons que la structure peut être protégée par une enveloppe composée du même polymère diélectrique. Dans ce cas, la structure devient plus rigide tolérant mieux les perturbations locales mais nécessitant plus de force mécanique pour être étirée. Un compromis est donc à faire.

<u>Conclusion :</u> Le nombre de cycles avant rupture est limité par le procédé de fabrication du générateur. Il est faible pour un système récupérateur mais peut être amélioré facilement. A l'heure actuelle et tant que le procédé de fabrication n'a pas été optimisé, réaliser des tests en fatigue plus poussés n'apporterait aucune information complémentaire utile à la caractérisation de ce dispositif.

4.3.8 Conclusion

Nous avons dimensionné, réalisé et caractérisé un prototype capable de récupérer 100µJ par cycle lors de la marche. Le cahier des charges imposé est respecté en termes d'encombrement, de tension de polarisation et de force utile.

Pour un cycle à charge Q constante, les mesures effectuées prennent en compte les pertes à la décharge (de 20 à 35%).

Toutefois, le polymère n'est pas utilisé dans une configuration optimale ce que témoigne le rendement moyen de l'étage de conversion électromécanique (35,7%). La gestion électrique doit être mise en place afin de gérer la charge et la décharge et de minimiser les pertes qui y sont associées.

4.4 Gestion électrique autonome : piste de réalisation

4.4.1 Réalisation d'un circuit de gestion électrique simple

La structure a été testée sur une charge résistive, afin de vérifier les signaux de sortie et les seuils d'énergie récupérable. Cette charge résistive peut représentée l'application à alimenter tel un capteur. Toutefois, dans la plus part des cas, cette énergie électrique récupérée sera stockée dans une batterie, ou une pile, soit dans un système capacitif (figure 4.23).

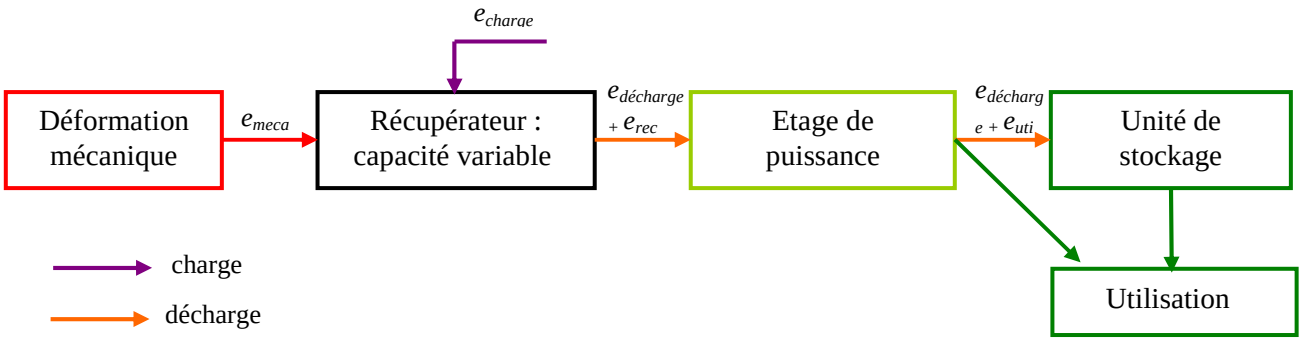


Figure 4.23 : Schéma de principe de l'étage de la gestion électrique

L'étage de puissance effectue le lien entre le récupérateur et l'unité de stockage. Ce circuit n'est pas autonome car il nécessite une source extérieure pour effectuer la charge de la structure récupératrice. Un circuit de gestion électrique simple, répondant au principe de la figure 4.23, est le circuit donné par la figure 4.24.

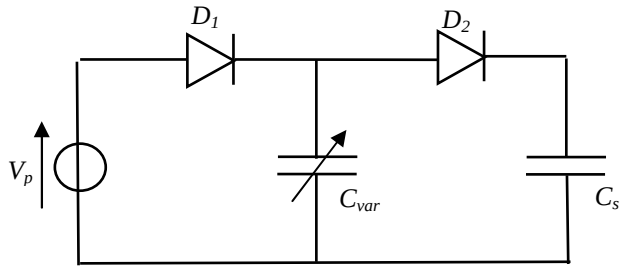


Figure 4.24 : Circuit simple de gestion électrique

Sur la figure 4.24, la capacité C_{var} représente la structure récupératrice et C_s est la capacité de stockage d'une valeur au moins 10 fois supérieure à la capacité variable.

Lorsque la capacité est à sa valeur maximale, les deux diodes D_1 et D_2 sont passantes : des charges sont injectées à la capacité C_{var} via la tension de polarisation V_p (<300V). La capacité de stockage se charge aussi sous la tension V_p. Puis, la capacité variable passe de sa valeur maximale à sa valeur minimale. Lorsque la structure entame son mouvement, la tension à ses bornes augmente, si bien que la diode D_1 se bloque : la structure évolue à charge Q constante jusqu'à ce que la tension aux bornes de la capacité variable soit égale à celle aux bornes de la capacité de stockage. A ce moment là, la structure évolue à tension V constante. Comme la constante de temps électrique est largement supérieure à la constante de temps mécanique, aucune charge n'est dissipé durant la phase de mouvement (phase active). Lorsque le mouvement mécanique est terminé, la tension aux bornes du prototype est égale à la tension aux bornes de la capacité de stockage. La diode D_2 est passante et des charges sont transférées de la capacité variable vers la capacité de stockage. La tension aux bornes de la capacité de stockage augmente. Puis, le prototype est à nouveau étiré. La capacité de ce dernier augmente, la tension à ses bornes chute. Si bien que la diode D_2 se bloque. A capacité maximale, la tension aux bornes du prototype est égale à la tension de polarisation. La diode D_1 devient alors passante et la structure se charge. On recommence un cycle générateur.

Au bout de n cycles, la tension aux bornes de la capacité de stockage atteint la tension maximale générée par la structure, soit ici deux fois la valeur de la tension de polarisation. De par la configuration du circuit de gestion électrique, la tension aux bornes de la capacité de stockage se stabilise à cette valeur.

Les charges et courants électriques associés circulant entre ces deux capacités sont très faibles. Ainsi, les diodes D_1 et D_2 doivent pouvoir supporter de hautes tensions (300V) et leur courant inverse doit être le plus faible possible (autour de 10nA) pour que les pertes électriques au travers de ces composants ne dépassent pas 10% de l'énergie récupérée. Nous choisissons d'utiliser la diode inverse d'un transistor BSP 324 de Infineon pouvant supporter une tension de 400V, et dont le courant de fuite est de 10nA.

La figure 4.25 donne l'évolution de la tension aux bornes de la capacité de stockage et la figure 4.26 l'évolution du courant au niveau du prototype pour le prototype 3. Les cycles sont réalisés manuellement et nous nous plaçons par facilité à une fréquence de 0.4Hz.

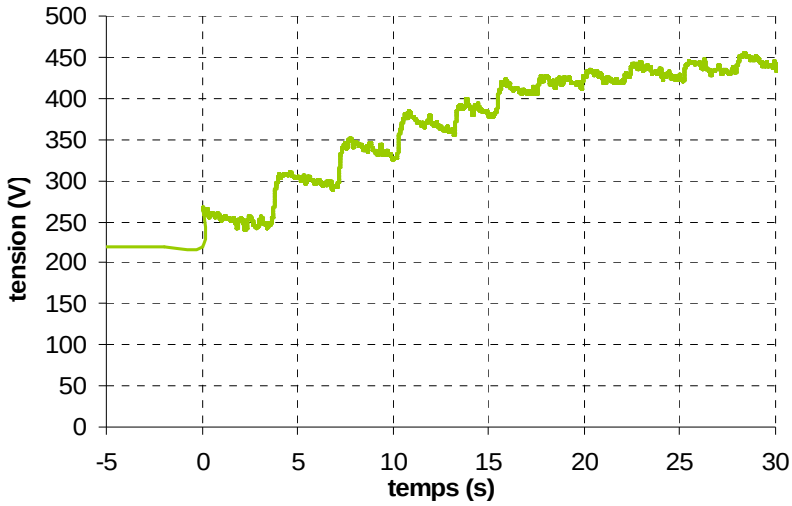


Figure 4.25 : Evolution de la tension aux bornes de la capacité de stockage

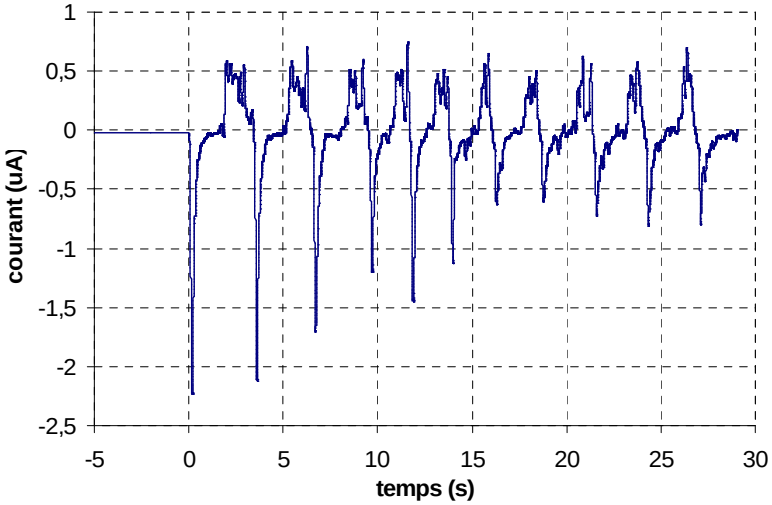


Figure 4.26 : Evolution du courant au niveau du prototype

Sur la figure 4.25, on note une première augmentation conséquente de la tension (première charge due à la tension de polarisation V_p), puis des augmentations plus faibles par palier (charge due aux variations de capacité de la structure récupératrice). La tension aux bornes de la capacité de stockage se stabilise à une valeur deux fois supérieure à la tension de polarisation comme prévu. On note une légère décharge de la capacité de stockage due au courant en inverse de la diode D_2.

Avec une capacité de stockage de 5nF, il faut réaliser 8 cycles pour que la tension aux bornes de la capacité de stockage soit le double de la tension de polarisation. L'énergie stockée est alors de 0.4mJ. Or, le transfert d'énergie d'une capacité à une autre est toujours partiel. Lors du transfert de charge entre les capacités, la diode est passante et est équivalente à une source de tension avec une résistance en série. Par un calcul simple de puissance mises en jeu, le rendement du transfert d'énergie est de moitié. L'énergie produite par la structure est donc de 0,8mJ. Or, le prototype a une capacité minimale de 1,78nF, ce qui permet de récupérer par cycle générateur 0.14mJ. Il faut alors réaliser 6 cycles générateur pour atteindre la charge maximale de la capacité de stockage. Expérimentalement, nous avons noté qu'il nous fallait 8 cycles. Cet écart s'explique par le courant de fuite de la diode D_2 en inverse.

<u>Conclusion :</u> La structure récupère bien une énergie transférable et stockable dans une capacité. Au vu des faibles courants et fortes tensions, les composants électroniques du circuit de gestion doivent être choisis avec précaution pour minimiser les pertes électriques associées à leur utilisation. Le circuit utilisé pour la gestion électrique n'est pas optimal, et ne se prête pas au calcul de rendement pour l'étage de gestion.

4.4.2 Gestion électrique autonome

Cette partie est basée sur les travaux réalisés par G. Despesse **[DES 2005]** au sein du CEA-Leti, qui a développé une structure électrostatique récupérant les vibrations ambiantes. Au cours de sa thèse, il a approfondi en particulier la partie gestion électrique associée à son application de récupération d'énergie. Ses travaux sont transposables à notre structure pour un cycle à charge Q constante. Dans ce sous chapitre, le principe général de fonctionnement et quelques consignes pour le dimensionnement seront présentés. En effet, nous avons mis l'accent au cours de cette thèse sur la partie compréhension et caractérisation du matériau, puisque les principes de la gestion électrique étaient connus. Ainsi, nous n'avons pas adapté l'électronique de gestion développée par G. Despesse à notre structure. Ceci est une amélioration de notre dispositif, en cours de réalisation.

4.4.2.1 Principe de fonctionnement

La partie gestion électrique doit assurer la charge et la décharge du système récupérateur au moment opportun ainsi que le transfert et le stockage de l'énergie récupérer. Cette gestion sera assurée par un circuit électrique comprenant un étage de puissance assurant la charge/décharge et le transfert, et un étage de commande pilotant l'étage de puissance. Ce circuit est le lien entre la source d'entrée mécanique et l'unité de stockage de type pile, batterie ou super capacité (figure 4.27).

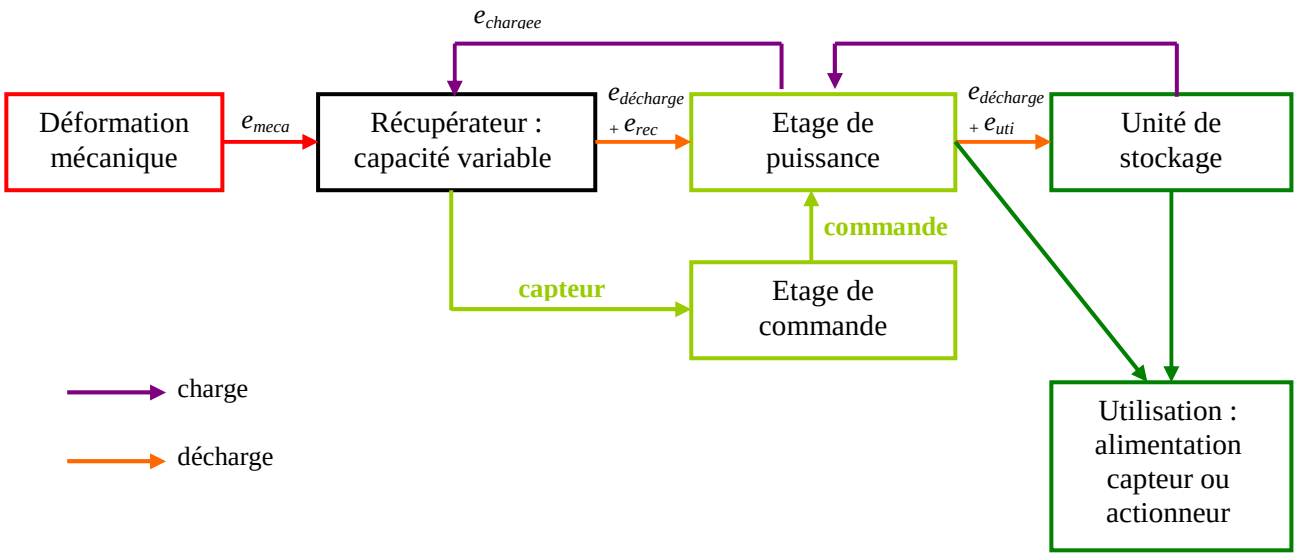


Figure 4.27 : Schéma du système de récupération complet

Au regard de cette chaîne, la gestion électrique permet de transformer, acheminer et stocker l'énergie électrique récupérée soit de la mettre en forme pour son utilisation future. L'énergie électrique doit être restituée sous forme continue avec une tension inférieure à 10V : caractéristiques de la plupart des systèmes (actionneur ou capteur) basse consommation.

L'étage de puissance est donc composé d'une structure abaisseuse de tension (Boost, Flyback). En effet, l'étage de conversion, noté « récupérateur » sur la figure 4.22, fournit une tension d'une centaine de volt sous un faible courant.

L'étage de commande doit être capable d'envoyer les signaux de fermeture et d'ouverture des interrupteurs au moment opportun, c'est-à-dire aux minimas et maximas de la capacité variable qui constitue l'étage de conversion électromécanique. Cet étage de commande a donc besoin d'un capteur qui le renseigne sur la valeur de la capacité variable. Cette fonction de détection de la capacité peut être réalisée de façon mécanique ou électrique.

4.4.2.2 Etage de puissance

L'étage de puissance doit être une structure réversible en courant et :

- élévatrice de tension dans le sens unité de stockage – récupérateur (charge de la structure)
- abaisseuse de tension dans le sens récupérateur – unité de stockage (décharge de la structure)

Au vu des études antérieures et en particulier des travaux de G. Despesse **[DES 2005]**, notre choix se porte sur une structure de type Flyback réversible dont le schéma est présenté figure 4.28.

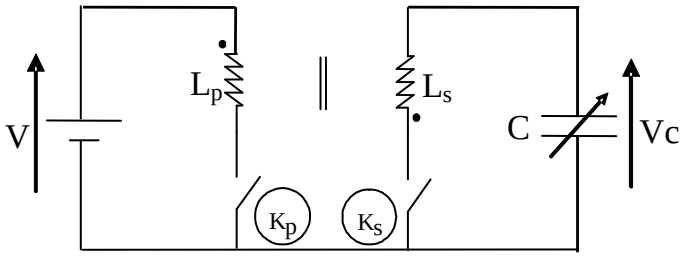


Figure 4.28 : Structure flyback réversible utilisée comme étage de puissance

La charge du dispositif s'opère en deux temps :

- l'interrupteur K_p est fermé le temps que l'inductance du primaire L_p stocke l'énergie nécessaire à la charge de la capacité *C*.
- l'interrupteur K_p est ouvert et l'interrupteur K_s est fermé le temps que l'énergie stockée dans l'inductance du secondaire L_s soit transférée à la capacité variable C. La charge de la structure est effectuée.

Les interrupteurs K_p et K_s sont ensuite maintenus ouverts et la phase active peut s'opérer : variation de capacité à charge Q constante.

La décharge du dispositif s'opère aussi en deux temps :

- l'interrupteur K_s est fermé et l'énergie de la capacité C (énergie de charge et énergie récupérée) est transférée vers l'inductance du secondaire L_s.
- l'interrupteur K_s est ouvert et l'interrupteur K_p est fermé le temps que l'énergie stockée dans l'inductance du primaire L_p soit transférée à la source V.

G. Despesse **[DES 2005]** a effectué une étude détaillée des pertes associées à chaque phase de cycle grâce à un modèle analytique complet prenant en compte des modélisations fines pour chacun des composants de circuit électrique. Respectant ces principes, le rendement à charge et à la décharge sera au minimum de 80%. Analytiquement Despesse **[DES2005]** obtient un rendement à la charge de 91% et à la décharge de 87% pour sa structure électrostatique.

4.4.2.3 Etage de commande

Cet étage correspond à la réalisation des signaux de commande des interrupteurs de la partie puissance. Ces signaux de commande se basent sur les minimas et maximas de la capacité de la

structure. Une fonction de détection des variations de la capacité est donc nécessaire. Cette fonction peut être :

- mécanique par un capteur de position ou de passage
- électrique par la mesure en continu de la capacité variable ou par l'observation de la dérivée de la tension aux bornes de la capacité variable

Dans tous les cas, cette fonction ne doit consommer que très peu d'énergie au regard de l'énergie récupérée par la structure.

Outre le moment opportun de fermeture et ouverture des interrupteurs, leur temps de fermeture est crucial puisqu'il correspond au temps nécessaire pour effectuer la charge et la décharge du système. Ce temps est piloté par l'étage de conversion et est fonction des courants et tension mises en jeu **[DES 2005]**. Ces temps peuvent être générés par une horloge ou par des cellules à retard. La seconde solution est moins gourmande en énergie.

Despesse avait réalisé une électronique discrète. Ces travaux ont été poursuivis au sein du CEA-Leti et l'étage de commande est actuellement intégré. Il consomme de 700nW à 2µW en fonction des temps de commutation imposé, ce qui est faible au regard de l'énergie récupérée par la structure (>100µW).

4.4.2.4 Conclusion sur la gestion électrique autonome

L'utilisation d'une structure Flyback réversible en courant permet de réaliser une gestion électrique autonome pour notre structure de conversion. Il reste à dimensionner avec précision les interrupteurs (mosfet) pour minimiser les pertes pendant la charge et la décharge, mais aussi le circuit magnétique source de nombreuses pertes (pertes fer…).

Enfin, sur la structure Flyback présentée, l'unité de stockage est un système type pile, batterie ou supercapacité qui stockerait la charge minimale pour réaliser le premier cycle de récupération d'énergie. On peut envisager une solution hybride à base de polymère actif (piézoélectrique par exemple) ou d'électrets pour réaliser cette première charge. Cette hybridation ne supprime pas l'unité de stockage mais cette dernière n'a plus besoin de contenir la première charge. Le système complet (conversion et récupération) est alors parfaitement autonome et n'est sujet à aucune source de polarisation extérieure type générateur.

4.5 Améliorations de la structure existante

Le premier prototype macroscopique étant opérationnel, la piste de l'intégration de l'étage de conversion au sein des textiles est envisagée.

En effet, jusqu'à présent, le dispositif est un patch extérieur rapporté à la genouillère ou plus généralement rapporté aux pièces en mouvements. Le but est d'intégrer ce dispositif récupérateur sous forme de fibres ou de petites membranes dans le tissu.

Ainsi, pour intégrer ce dispositif au sein d'un tissu, plusieurs critères sont à prendre en compte :

- choix de la localisation : où sont les plus grandes déformations au niveau du genou ?
- choix de la forme permettant de récupérer le plus d'énergie : quel tissage ?
- choix et forme du diélectrique : fibre ? membrane ? tuyau ?
- réalisation des électrodes : fil de cuivre ? graisse conductrice ?

A tous ces critères s'ajoutent celui de contrainte de réalisation technologique : sait-on réaliser toutes les solutions envisagées ? Y a –t-il des limitations sur le diamètre des fils utilisés pour le tissage ?...

Cette étude est en cours de réalisation et seules les grandes lignes sont présentées au sein de ce mémoire.

4.5.1 Localisation

Afin de déterminer avec précision où sont situées les déformations maximales au sein du genou, un modèle numérique du genou sous le logiciel de simulation Ansys 11 est réalisé. En effet, un modèle analytique ne nous permet pas de calculer une carte des déformées au niveau du genou lors de la marche ou de la course. En revanche, par une simulation numérique simple, les mouvements du genou peuvent être modélisés, en utilisant les données biomécaniques fournies en annexe 6. Il suffit alors de rajouter une genouillère sur l'ossature « cuisse-rotule-mollet » pour déterminer avec assez de précision la localisation des déformations maximales.

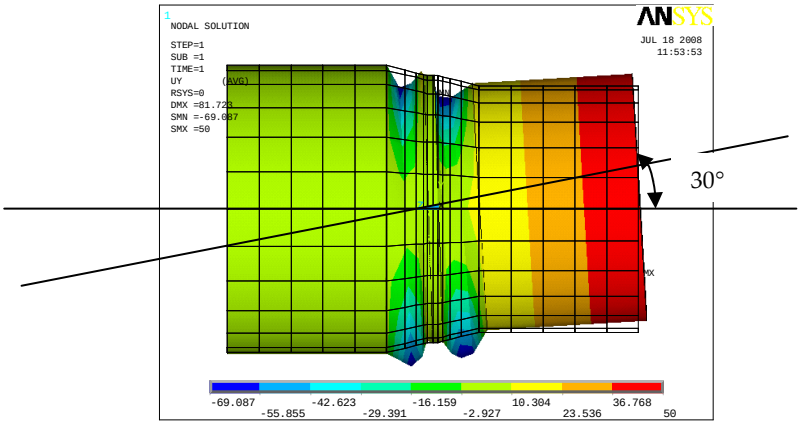
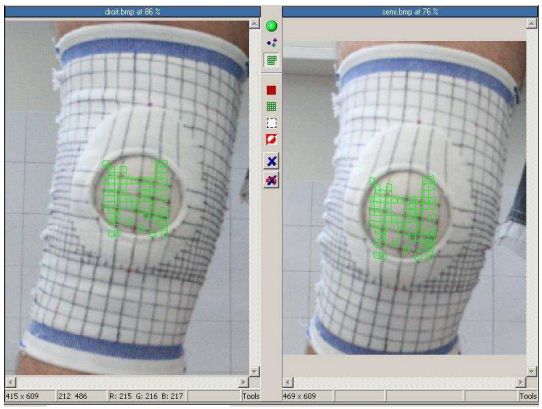


Figure 4.29 : Déformation au niveau d'une genouillère pour un angle de rotation du genou de 30°

Ces simulations numériques sont complétées par des expériences afin de valider les seuils trouvés de déformées. Pour les expériences, un quadrillage est tracé sur une genouillère : fin au centre de cette dernière (5*5mm) et large sur les bords (10*10mm). La marche humaine est simulée et des photos sont prises toutes les 1,5s. A partir de ces photos, des corrélations entre un point de l'image à l'instant t et le même point à l'instant t+1 sont réalisées selon la même procédure que les test mécanique du chapitre 2 (annexe 2). Ces corrélations nous renseignent sur les déformations subies par la genouillère mais aussi sur les déplacements au sein de cette dernière.



au repos

genou plié avec un angle de rotation de 30°

Figure 4.30 : Corrélation au niveau de la rotule entre un état au repos et un état semi-plié

Les premières expériences et simulations révèlent que les déformations les plus importantes sont situées sur la face avant de la genouillère et sont comprises entre 10% et 15%. Nous sommes bien en grandes déformations avec une fréquence de fonctionnement faible (1 à 10Hz). Un polymère diélectrique est préconisé pour ce type d'application.

4.5.2 Matériels et forme du dispositif intégré

Le polymère 3M VHB 4910 ne peut être utilisé pour cette application tissée, car il se présente sous forme de rouleau adhésif double face. Après étude comparative des propriétés des polymères diélectriques commercialisés, le polyamide Nylon 6/6 vendu par Goodfellow a été retenu car il allie déformations importantes (>10%), résistance mécanique avec un module de Young de 3GPa, bonne permittivité diélectrique de 3.6 et haut champ électrique de claquage (25MV.m-1). Ce polymère est disponible sous forme de monofilament de diamètre inférieur à 1mm, de tige, de tube, de grille.

Les électrodes seront à priori des fils conducteurs de cuivre émaillé, facilement guipable et tissable. Des électrodes métalliques réalisées par pulvérisation ou vaporisation, ou des peintures conductrices sont aussi envisageables car les déformations sont moyennes (10-20%). Les graisses ne sont pas envisageables pour un tissage.

Le but est de réaliser des capacités variables au sein d'un textile. Plusieurs solutions basées sur le tissage sont possibles pour réaliser des capacités planes ou cylindriques.

La première solution est un tissu composé de trois sous-couches tissées formant ainsi une capacité plan. Cette solution est surfacique et tend à réaliser une seule grande capacité variable.

Pour les autres solutions, seules les fibres selon un sens du tissage (chaîne) sont actives. Les fibres selon l'autre sens (trame) sont en élasthanne pour maintenir la structure en forme et lui assurer un degré de liberté en traction selon la chaîne. Ces solutions forment des capacités plans ou cylindriques locales. L'énergie récupérée totale est la somme de l'énergie récupérée par chacune de ces capacités locales. Une solution de capacité cylindrique classique et deux solutions de capacités « planes » ont été envisagées.

Le tableau 4.5 récapitule les quatre solutions envisagées.

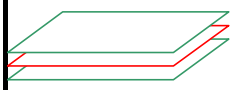
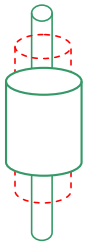
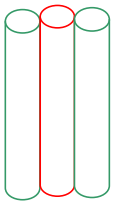
	Solution 1	**Solution 2**	**Solution 3**	**Solution4**
Motif unité				
Ensemble		Fibres cyclindriques selon la chaîne du tissu, et trame en élasthanne	Fibres guipées selon la chaîne du tissu, et trame en polyamide ou élasthanne	Tissage chaîne (fil conducteur, diélectrique, fil conducteur) et trame (fibre de coton)
Contrainte technologique	assemblage manuel des 3 couches	assemblage manuel	deux fils guipés ne seront pas parfaitement alignés	tissage doit être asez serré pour assurer le contact

Tableau 4.5 : Solution pour l'intégration du dispositif récupérateur diélectrique

Pour chacune de ces quatre solutions l'énergie récupérable est estimable en fonction des déformations subies par les fibres et des tensions de polarisation appliquées. Ainsi, pour une surface de 1cm², la solution 1 récupère 2 fois plus que la solution 2, 12 fois plus que la solution 3 et 10 fois plus que la

solution 4. Au vu des calculs mis en place, la solution 1 est la plus pertinente en termes d'énergie électrique récupérable.

Sous une déformation de 10%, une tension de polarisation de 200V et une épaisseur estimée à 100µm, la solution 1 récupère 100µW pour une surface active de 338cm² de tissu soit 7.5 fois plus que le patch extérieur. Cette surface correspond à un tiers de la surface totale de la genouillère

Les quatre solutions sont en cours de réalisation et de test, mais aucun résultat probant n'a été obtenu à l'heure actuelle.

<u>Conclusion :</u> Intégrer le dispositif récupérateur au sein du textile est une solution prometteuse à creuser.

4.5 Conclusion

Au cours de ce chapitre, nous avons dimensionné, réalisé et caractérisé une structure récupératrice d'énergie. Cette structure est un patch extérieur placé derrière le genou, et capable de récupérer 100µW sous une tension de polarisation de 200V, lors d'un fonctionnement normal (marche humaine). Ce patch est très léger (<1g), et nécessite peu de force pour le déformer assurant ainsi de ne pas gêner l'utilisateur et de récupérer de façon quasi opportuniste l'énergie mécanique lors de la marche au niveau du genou. Le rendement total de la structure est tout à fait correct 35,7% et peut être amélioré

De même, la densité d'énergie de la structure est de 2,15mJ.cm^{-3}, ce qui est 50 fois plus faible que la densité d'énergie maximale récupérable pour ce niveau de déformation : 0,1J.cm^{-3} en théorie (chapitre 3). La densité d'énergie est faible car le polymère n'est pas utilisé dans des conditions optimales : tension de polarisation et déformation active assez éloignées des maximas. Si on augmente la tension de polarisation à 1000V, la structure est capable de récupérer 1,74mJ pour une déformation active de 50%, soit une densité d'énergie de 37mJ.cm^{-3}. Pour s'approcher du maximum théorique, il faut augmenter la déformation active subie par la structure (max 125%, actuel 50%). Mais ces tensions et déformations actives ne respectent plus les spécifications que nous nous sommes imposées.

De plus, les tests réalisés ont permis de valider le modèle mis en place et le processus de conception. Si bien que le modèle développé au chapitre 3 est utilisable et adaptable à tous types de structures et sollicitations.

La partie gestion électrique a été abordée et des pistes ont été mises en place pour la réalisation de cette dernière.

Enfin, l'intégration de cette solution au sein des textiles a été abordée. Les solutions technologiques envisagées ont été présentées. Les échantillons sont en cours de fabrication et les tests n'ont pas encore été opérés. Mais ces solutions présentent un fort potentiel tant sur le point de la densité d'énergie récupérable et que celui de la réalisation et rupture technologique.

Conclusions générales et perspectives de recherche

CG1. Conclusion des travaux de thèse

Les travaux présentés dans ce mémoire de thèse, concernent la récupération d'énergie mécanique ambiante via des structures à base de polymères électroactifs. L'objectif est de développer de nouveaux générateurs performants, flexibles, légers, travaillant aux fréquences ambiantes (<100Hz) et capables d'alimenter un capteur basse consommation (100µW).

A partir d'un état de l'art complet des polymères électroactifs, nous avons mis en avant six familles potentiellement intéressantes pour des applications de récupération d'énergie. Afin de caractériser au mieux le comportement de ces familles et, dans un souci de comparaison des performances, des modèles analytiques ont été mis en place et, pour certain validés expérimentalement. Cette analyse est la première étude comparative complète des polymères électroactifs en mode générateur, et à ce titre est un outil fort utile pour la conception de solution de récupération innovante.

De cette analyse comparative sont ressortis les polymères diélectriques possédant la plus haute densité d'énergie récupérable. Les recherches se sont donc axées sur cette famille de matériaux afin d'en déterminer le meilleur candidat (3M VHB 4910) et d'en réaliser une caractérisation mécanique et électrique fine. Ces caractérisations nous ont permis de comprendre le fonctionnement de tels polymères mais aussi d'appréhender les variations possibles de ses constantes intrinsèques en fonction de paramètres extérieurs telles la température, la fréquence, la précontrainte. Ces caractérisations ont été réalisées sur un polymère, mais la démarche mise en place est adaptable à tous types de polymères diélectriques.

A partir du principe de fonctionnement des polymères diélectriques, un modèle analytique a été mis en place en mode générateur. Ce modèle est basé sur les déformations principales de la structure et utilise les caractérisations électriques et mécaniques. Ainsi, il est adaptable à tous scenarii et nous permet d'estimer l'énergie récupérable, l'allure des signaux de sortie, les forces mécaniques mises en jeu. De plus, grâce aux caractérisations réalisées, le domaine de fonctionnement pour chaque scenarii peut être déterminé en fréquence, température, déformations maximales supportables et tension de claquage. Ainsi, les performances de la structure au sein de sa plage de fonctionnement peuvent être déterminées. En conclusion, ce modèle analytique peut être utilisé en direct ou pour résoudre un problème d'optimisation inverse.

La dernière partie de ces travaux de thèse est l'utilisation des polymères diélectriques pour une application novatrice : récupérer l'énergie mécanique lors de la marche humaine au niveau du genou. Grâce au modèle développé et aux caractérisations réalisées, une optimisation de la structure récupératrice a été opérée afin de respecter le cahier des charges que nous nous sommes imposés. Ainsi, la structure développée est un patch extérieur de 5x3cm², placé derrière le genou et capable de récupérer 100µW, sous une tension de polarisation de 200V, lors de la marche humaine (1Hz). Des prototypes ont été réalisés et caractérisés, validant ces seuils d'énergie. Le rendement total de la structure est très correct (<30%), mais directement lié au cahier des charges choisi (tension de polarisation la plus faible possible).

Des pistes pour la gestion électrique autonome de la structure ont été amorcées, ainsi que pour l'intégration de cette technologie au sein des textiles.

CG2. Perspectives de recherches

Les perspectives de recherches sont multiples et dans des axes très différents de par la nouveauté de cette technologie.

Dans un premier temps, le travail à venir est la réalisation de la gestion électrique autonome en se basant sur les travaux de recherche de G. Despesse **[DES 2005]**. Cette gestion électrique doit permettre de s'affranchir de toute source de tension extérieure pour la réalisation de la charge de la structure, mais doit aussi minimiser les pertes électriques à la charge et à la décharge de la structure. La solution finale s'oriente donc vers une solution hybride où un matériau actifs type piézoélectrique pourrait réaliser la première charge, ou alors une solution avec des électrets.

En même temps, l'intégration de polymères diélectriques au sein des vêtements doit être poursuivie. En effet, ils permettent de récupérer suffisamment d'énergie pour alimenter des capteurs basse consommation, et peuvent potentiellement trouver un nombre important d'applications (vêtements intelligents, siège de voiture, voile de bateau, drapeau…)

Enfin, la miniaturisation de tels dispositifs et leur réalisation par des techniques MEMS doit être envisagée. En effet, les capteurs basse consommation que nous souhaitons alimenter sont de tailles millimétriques alors que la solution actuelle est de taille centimétrique. La réduction d'échelle est donc nécessaire et s'accompagnera du développement de solutions multi-stacks, permettant ainsi d'augmenter l'énergie récupérable.

De par le caractère émergeant des polymères électroactifs, bien d'autres pistes sont envisageables, comme l'amélioration des matériaux et des électrodes mais ceci relève du domaine de la chimie, comme l'industrialisation des procédés de fabrication ou encore la mise en place de modèles numériques permettant de simuler des structures et sollicitations plus complexes.

Références bibliographiques

[AKB 2004] M.C. Akbay
"Performance of compliant electrodes in electro active polymer (EAP) actuators"
North Carolina State university, USA
Master of science in Textile management and technology, 2004

[ASH] M.F. Ashy, D.R.H Jones
"Matériaux vol.1 &2"
Edition Dunod

[BAR 2001] Y. Bar-Cohen
"Electroactive polymer (EAP) actuators as artificial muscles : reality, potential, and challenges"
SPIE Press, 2001

[BAU 2002] F. Bauer, E. Fousson, Q. M. Zhang, L. M. Lee
"Ferroelectric copolymers and terpolymers for electrostrictors : synthesis and properties"
Pennsylvania State University, USA and Institut Franco-Allemand de Recherche de Saint-Louis
11th International Symposium on Electrets, 2002

[BEN 2002] M. Benslimane, P. Gravesen, P. Sommer-Larsen
"Mechanical properties of dielectric elastomer actuators with smart metallic compliant electrodes"
Danfoss and Risø national laboratory, Denmark
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2002 SPIE vol 4695

[BHA 2001] V. Bharti, G. Shanthi, H. Xu, Q. M. Zhang, K. Liang
"Evolution of transitional behavior and structure of electron-irradiated poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) copolymer films"
Materials Research Laboratory, Pennsylvania State university, USA
Materials Letters 47, 2001

[BOL 2006] C. Bolzmacher, M. Hafez, M. B. Khoudja, P. Bernardoni, S. Dubowsky
"Flexible dielectric elastomer actuators for wearable human-machine interfaces"
Massachusetts Institute of Technology, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2006 SPIE vol 6168

[BUC 2002] G.S. Buckley, C. M. Roland, R. Casalini, A. Petchsuk, T. C. Chung
"Electrostrictive properties of poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene-chlorotrifluoroethylene)"
Naval Research Laboratory and George Mason University and Pennsylvania State University, USA
Chem. mat., vol. 14, p. 2590-2593, 2002

[BUE 2005-a] M. A. Buechler
"Variational modeling of ionic polymer-based structures"
Virginia Polytechnic Institute and State University, USA
Master of Science in Mechanical engineering, july 2005

[BUE 2005-b] M. A. Buechler, D. J. Leo
"A variational modeling of ioneric polymer actuators and sensors"
Center for Intelligent Material Systems and Structures, Virginia Tech, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2005 SPIE vol 5760

[BUE 2006] M. A. Buechler, D. J. Leo
"Variational modeling of ionic polymer plate structures"
Los Alamos National Laboratory, USA
Center for Intelligent Material Systems and Structures, Virginia Tech, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2006 SPIE vol 6166

[CAR 2003] F. Carpi, P. Chiarelli, A. Mazzoldi, D. de Rossi
"Electromechanical characterisation of dielectric elastomer planar actuators : comparativce evaluation of different electrode materials and different counterloads"
University of Pisa, Italy
Sensors and actuators A 107, 2003

[CAR 2005-a] F. Carpi, D. De Rossi
"Electroactive polymer-based devices for e-textiles in biomedicine"
University of Pisa, Italy
IEEE-Transation on information in biomedecine, volume 9 no3, sep 2005

[CAR 2005-b] F. Carpi, D. De Rossi
" A new contractile linear actuator made of dielectric elastomers"
E.Piaggio, University of Pisa, Italy
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2005 SPIE vol 5759

[CAR 2006] F. Carpi, D. De Rossi
"Contractile dielectric elastomer actuator with folded shape"
E.Piaggio, University of Pisa, Italy
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2006 SPIE vol 6168

[CHE 1999] Z.-Y. Cheng, H.S. Xu, J. Su, Q.M. Zhang, P.-C. Wang, A.G. MacDiarmid
"High performance of all-polymer electrostrictive systems"
Materials research laboratory, Pennsylvania State University, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 1999 SPIE vol 3669

[CHE 2001] Z. Y. Cheng, V. Bharti, T.-B. Xu, T. Mai, Q.M. Zhang
"Electrostrictive poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) copolymers"
Materials Research Institute- Pennsylvania State University, USA
Sensors and actuators, 2001

[CHI 2008] S. Chiba, M. Waki, R. Kornbluh, R. Pelrine
"Innovative power generators for energy harvesting using electroactive polymer artificial muscles"
SRI International, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2008 SPIE vol 6927

[CHO 2005] H.R. Choi, K. Jung, N.H. Chuc, M. Jung, I. Koo, J. Koo, J. Lee, J. Lee, J. Nam, M. Cho, Y. Lee
"Effects of prestrain on behavior of dielectric elastomer actuator"
Sungkyunkwan University, Korea
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2005 SPIE vol 5759

[DES 2005] G. Despesse
"Etude des phénomènes physiques utilisables pour alimenter en énergie électrique des micro-systèmes communicants"
I*nstitut National Polytechnique de Grenoble, France*
Doctorat soutenu en juin 2005

[DEL 2006] R. Delille, M. Urdaneta, K. Hsieh, E. Smela
"Novel compliant electrodes based on platinum salt reduction"
Departement of mechanical engineering, University of Maryland, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2006 SPIE vol 6168

[DUB] J.C. Dubois
"Propriétés diélectriques des polymères"
Université Pierre et Marie Curie, Paris, France
Technique de l'ingénieur, article E-1850

[FER 1999] L. Ferrara, M. Shahinpoor, K.J. Kim, B. Schreyer, A. Keshavarzi, E. Benzel, J. Lantz
"Use of ionic polymer-metal composites (IPMCs) as a pressure transducer in the human spine"
University of New Mexico, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 1999 SPIE vol 3669

[FRE 2004] M. I. Frecker, W. M. Aguilare
"Analytical modeling of a segmented unimorph actuator using electrostrictive P(VDF-TrFE) copolymer"
Pennsylvania State University, USA
Smart Materials and Structures, vol. 13, 2004

[GEN 2000] P.G. De Gennes, K. Okumura, M. Shahinpoor, K.J. Kim
"Mechanoelectric effects in ionic gels"
College de France, France and University of New Mexico, USA
Europhysics Letters, vol 50, no 4, pp. 513-518, 2000

[GON 2003] P. Gonon, A. Sylvestre, H. Meynen, L. Van Cotthem,
"Permittivity and conductivity of low-dielectric-constant SiOC:H films deposited by plasma-enhanced chemical vapor deposition"
G2elab, Grenoble, France
Journal of the electrochemical society, vol. 150, pp.47-52, 2003

[GOU 2005] N. Goulbourne, E. Mockensturm, M. Frecker
"A nonlinear model for dielectric elastomer membranes"
Pennsylvania State University, USA
Journal of Applied Mechanics, vol.72, nov. 2005

[GUI 2006] R. Guigon
"Dimensionnement et réalisation d'une structure piézoélectrique vibrante pour la récupération de l'énergie mécanique des gouttes de pluie"
Institut National Polytechnique de grenoble, France
Mémoire de DRT, Septembre 2006

[GUO 2003] S. S. Guo, S. T. Lau, H. L. W. Chan, X.-Z. Zhao, C. L. Choy
"Structural evolution and dielectric relaxation behavior of electron-irradiated poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) 80/20 mol% copolymers"
The Hong Kong Polytechnic University, Hong Kong
Journal of Applied Physics, vol. 94, n. 9, 2003

[GUO 2004] S. Guo, X.-Z. Zhao, Q. Zhou, H. L. W. Chan, C. L. Choy
"High electrostriction and relaxor ferroelectric behavior in proton-irradiated poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) copolymer"
Wuhan University-China and Honk Kong Polytechnic University, China
Applied Physics Letters, vol. 84, n.17, 2004

[HA 2007] S.M. Ha, W. Yuan, Q. Pei, R. Pelrine, S. Stanford
"Interpenetrating networks of elastomers exhibiting 300% electrically-induced area strain"
SRI International and UCLA los Angeles, USA
Smart Materials and Structures, 2007, vol. 16, p.280-287

[HUN 2000] I.W. Hunter, P. Anquetil, J.D.W. Madden, P.G.A. Madden
"Conducting polymer devices"
Rapport interne du MIT, USA, 2000

[HUN 2002] I.W. hunter, S.R. Lafontaine, J.D. Madden
"Conducting polymer generator-actuator with energy storage/recovery"
US patent 6,157,113 dec 2000

[HUY 2005] A. Huynh Kim Long
"Analyse du comportementr dynamique d'un élastomère : modélisation et identification"
Ponts et Chaussées, France
Thèse soutenue en 2005

[KHO 2007] P; Khodaparast, S.R. Ghaffarian, M.R. Khosroshahi
"Effect of different electrode materials on the performance of smart composite actuators based on dielectric elastomers"
Amirkabir Universoity of Technology, Iran
Key Engineering Materials, vol.334-335, p. 985-988, 2007

[KIM 2000] J. Kim, J.Y Kim, S. Choe
"Electro-active papers : its possibility as actuators
Inha University, South Korea
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2000 SPIE 3987

[KIM 2002] J. Kim, Y.B. Seo
"Electro-active paper actuators"
Inha University, South Korea,
Smart material Structure, may 2002

[KIM 2003] K.J Kim, M. Shahinpoor
"Ionic polymer-metal composites : II Manufacturing techniques"
Artificial muscle research institut,University of New Mexico, USA
Smart Material sand structures, 2003

[KIM 2005] J. Kim, W. Jung, W. Craft, J. Shelton, K. D. Song, S. H. Choi
"Mechanical and electrical properties of electroactive papers and its potential application"
I*nha University, South Korea*
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2005 SPIE vol 5759

[KOF 2001] G. Kofod
"Dielectric elastomer actuator"
Laboratoire RISØ, Technical University of Denmark, Denmark
Phd-thesis, Septembre 2001

[KOF 2003] G. Kofod, P. Sommer-Larsen, R. Kornluh, R. Pelrine
"Actuation response of polyacrylate dielectric elastomers"
Danish Polymer Centre, RISØ National Laboratory and SRI International, USA
Journal of Intelligent Material Systems and Structures, vol.14, p.787-793, december 2003

[KOF 2005] G. Kofod, P. Sommer-Larsen
"Silicone dielectric elastomer actuator : finite-elasticity model of actuation"
Laboratoire RISO, Technical University of Denmark, Denmark
Sensors anrd Actuators A 122, 2005

[KON 2004] M. Konyo, Y. Konishi, S. Tadokoro, T. Kishima
"Development of velocity sensor using ionic polymer-metal composites"
Dep of Computer and systems engineering, Kobe University, Japan
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2004 SPIE vol 5385

[KOR 2000] R. Kornbluh, R. Pelrine, J. Joseph, Q. Pei, S. Chiba
"Ultra-high strain response of elastomeric polymer dielectrics"
SRI International,USA
Material research society vol.600, 2000

[KOR 2002] R. Kornbluh, R. Pelrine, Q. Pei, R. Heydt, S. Stanford, S. Oh, J. Eckerle
"Electroelastomers: Application of dielectric elastomer transducer for actuation, generation and smart structures"
S*RI International,USA*
Conference on Ind. and com. applications of smart structures technologies, 2002, SPIE vol 4698

[KYM 2000] J. Kymissis, C. Kendall, J. Paradiso, N. Gershenfeld
"Parasitic power harvesting in shoes"
MIT Laboratory, USA

[LEO 2007] V. Leonov, T. Torfs, P. Fiorini, C. Van Hoof
"Thermoelectric converters of human warmth for self-powered wireless sensor nodes"
IMEC, Belgium
IEEE Sensors journal, vol.7, n.5, p.650-657, May 2007

[LIN 2004] W. Lin, M. Bian, G. Yang, Q. Chen
"Strain-induced crystallization of natural rubber as studied by high-resolution solid-state ^{13}C NMR spectroscopy"
Polymer , vol. 45, pp.4939-4943, 2004

[LIU 2004] Y. Liu, K. Pen, F. Hofmann, Q. Zhang
"Electrostrictive polymers for mechanical energy harvesting"
Dep of Electrical Engineering, Penn State University, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, San Diego, 2004 SPIE vol 5385

[LIU 2005] Y. Liu, K. L. Ren, H. F. Hofmann, Q. Zhang
"Investigation of electrostrictive polymers for energy harvesting"
Pennsylvania State University, USA
IEEE Transaction on Ultrasonics, ferroelectrics, and Frequency Control, vol. 52, n. 12, 2005

[MAD 2001] J.D.W. Madden, P.G.A. Madden, I.W. Hunter
"Polypyrrole actuators : modeling and performance"
MIT, Cambridge, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2001 SPIE vol 4329

[MAD 2002] J.D.W. Madden, P.G.A. Madden, I.W. Hunter
"Conducting polymer actuators as engineering materials"
MIT, Cambridge, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2002 SPIE vol 4695

[MAR 2005] M. Marzencki, S. Basrour, B. Charlot, M. Colin, S. Spirkovich
"A MEMS piezoelectric vibration energy harvesting device"
TIMA - Grenoble - France
Powermems conference- Japan - 2005

[MAT 2006] G. Mathew, J.M. Rhee, C. Nah, D.J Leo
"Effects of silicone rubber on properties of dielectric acrylate elastomer actuator"
Chonbuk National University, South Korea and Virginia Polytechnic Institute, USA
Polymer Engineering and Science, 2006

[MOO 1940] M. Mooney
"A theory of large elastic deformation"
United state rubber company, New Jersey, USA
Journal of apllied physics, 1940

[NAV 2007] C. Navone, M. Plissonier, C. Salvi, I. Chartier, T. Lanier, Y. Breton
"Electrical power generation from knitted textile using the body heat"
CEA-LITEN, France
PowerMEMS 2007, p311-314

[NEW 2002] K. Newbury
"Characterization, Modeling, and Control of Ionic Polymer Transducer"
Virginia Polytechnic Institute and State University, USA
PhD thesis, september 2002

[NOG 1996] B. Nogarède
"Moteurs piézoélectriques"
Institut National Polytechnique de Toulouse, France
Techniques de l'Ingénieur, article D 3 765, 1996

[PEL 1998] R.E. Pelrine, R.D. Kornbluh, J.P. Joseph
"Electrostriction of polymer dielectrics with compliant electrodes as a means of actuation"
SRI International, USA
Sensors and Actuators A, vol. 64, p.77-85, 1998

[PEL 1999] R. Pelrine, R. Kornbluh, J. Josep, R. Heydt, Q. Pei, S. Chiba
"High-field deformation of elastomeric dielectrics for actuators"
SRI International, USA
Materials Science and Engineering C, vol.11, p.89-100, 2000

[PEL 2001] R. Pelrine, R. Kornbluh, J. Eckerle, P. Jeuck, S. OH, Q. Pei, S. Stanford
"Dielectric elastomer : generator mode fundamentals and applications"
SRI International, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2001 SPIE vol 4329

[PLA 2005] S.R. Platt, S. Farritor, H. Haider
"On low-frequency electric power generation with PZT ceramics"
University of Nebraska, USA
IEEE/ASME Transactions on Mechatronics, vol.10, n.2, Apr 2005

[PLA 2006] J.S. Plante
"Dielectric elastomer actuators for binary robotics and mechatronics"
Massachusetts Institute of Technology, USA
Ph-d thesis, Feb 2006

[POU 2004] G. Poulin
"Contribution au développement d'un générateur piezoelectrique pour applications nomades"
U*niversité Paris XI Orsay, France*
Doctorat, juin 2004

[ROS 2007] S. Rosset, M. Niklaus, P. Dubois, M. Dadras, H.R. Shea
"Mechanical properties of electroactive polymer microactuators with ion-implanted electrodes"
Ecole polytechnique fédérale de Lausanne et Université de Neufchâtel, Suisse
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2007 SPIE vol 6524

[ROY 2001] D. Roylance
"Engineering viscoelasticity"
Massachusetts Institute of Technology, 2001

[RUN 2007] J.P. Runt, J.J. Fitzgerald
"Dielectric spectroscopy of polymeric materials"
Published by the American chemical society, 1997

[SAA 2003] P. Saad
"Modélisation et identification du comportement non linéaire des cales en caoutchouc"
Ecole Centrale de Lyon, France
Doctorat, février 2003

[SCH 2005] H.F. Schlaak, M. Jungmann, M. Matysek, P. Lotz
"Novel multilayer electrostatic solid-state actuators with elastic dielectric"
Darmstadt, University of Tecgnology, Germany
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2005 SPIE vol 5759

[SHA 1995] M. Shahinpoor
"A new effect in ionic polymeric gels :the ionic flexogelectric effect"
I*ntelligent materials, structures and systems laboratory, University of New Mexico, USA*
SPIE Conference, 1995, vol 2441

[SHA 2001] M. Shahinpoor, K.J Kim
"Ionic polymer-metal composites : I Fundamentals"
Artificial muscle research instituta,University of New Mexico, USA
Smart Material sand structures, 2001

[SHA 2002] M. Shahinpoor, M. Mojarrad
"Ionic polymer sensors and actuators"
brevet US 6,475,639, nov 2002

[SHA 2003] M. Shahinpoor
"Ionic polymer-conductor composites as biometic sensors, robotic actuators and artificial muscles- a review"
Artificial muscle research instituta,University of New Mexico, USA
Electrochimica Acta, 2003

[SHA 2004-a] M. Shahinpoor, K.J Kim
"Ionic polymer-metal composites : III Modeling and simulation as biometic sensors, actuators, transducers, and artificial muscles"
Artificial muscle research instituta,University of New Mexico, USA
Smart Material sand structures, 2004

[SHA 2004-b] M. Shahinpoor
"Smart thin sheet batteries made with ionic polymer metal composites (IPMC's)"
Artificial muscle research instituta,University of New Mexico, USA
International Mechanical Engineering Congress and exposition, Californie, novembre 2004

[SHA 2005] M. Shahinpoor, K.J Kim
"Ionic polymer-metal composites : IV Industrial and medical applications"
Artificial muscle research instituta,University of New Mexico, USA
Smart Material sand structures, 2005

[SOD 2004] H.A. Sodano, D.J. Inman, G. Park
"A review of power harvesting from vibration using piezoelectric materials"
Virginia Polytechnic Institute and Los alamos national Laboratory, USA
The shock and vibration digest, vol. 36, no. 3, may 2004

[SOM 2002] P. Sommer-Larsen, G. Kofod, S. MH, M. Benslimane, P. Graversen
"Performance of dielectric elastomer actuators and materials"
Danish Polymer Center, RISØ National Laboratory and Danfoss, Denmark
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2002 SPIE vol 4695

[TAK 1997] W. Takashima, T. Uesugi, M. Fukui, M. Kaneko, K. Kaneto
"Mechanochemoelectrical effect of polyaniline film"
Institute of Technology, Fukuoka, Japan
Synthetic metals, 1997

[TAN 2000] Y. Tang, X.-Z. Zhao, H. L. W. Chan, C. L. Choy
"Effect of electron irradiation on poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) copolymers"
Wuhan University-China and Honk Kong Polytechnic University, China
Applied Physics Letters, vol. 77, n.11, 2000

[TOK 1999] S. Toki, T. Fujimaki, M. Okuyama
"Strain-induced crystallization of natural rubber as detected real-time by wide-angle X-ray diffraction technique"
Polymer, vol.41, pp.5423-5429, 1999

[VIEL 1999] E. Viel
"La marche humaine, la course et le saut"
Edition Masson, 1999

[WAN 2002] M. Watanabe, H. Shirai, T. Hirai
"Wrinkled polypyrrole electrode for electroactive polymer actuators"
Shinshu University, Japan
Journal of Applied Physics, vol.92, n.8, p.4631-4637, 2002

[WAX 1999] S. G. Wax, R. R. Sands
"Electroactive polymer actuators and devices"
DARPA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, Newport Beach, California, mach 1999 SPIE vol 3669

[WIS 2007] M. Wissler
"Modeling dielectric elastomer actuators"
Swiss Federal Institute of Technology, Switzerland
PH-D thesis, 2007

[XIA 2004] F. Xia, R. Klein, F. Bauer, Q. M. Zhang
"High performance P(VDF-TrFE-CFE) terpolymer for bioMEMS and microfluidic devices"
Pennsylvania State University, USA and Institut Franco-Allemand de Recherche de Saint-Louis
Materials research Society, vol. 785, 2004

[XU 2001] H. XU, Z.-Y. Cheng, D. Olson, T. Mai, Q. M. Zhang
"Ferroelectric and electromechanical properties of poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene-chlorotrifluoroethylene) terpolymer"
Materials Research Laboratory, Pennsylvania State university, USA
Applied Physics Letters, vol. 78, n. 16, 2001

[YAN 2005] E. Yang, M. Frecker, E. Mockenstrum
"Viscoelastic model of dielectric elastomer membranes"
Pennsylvania State University, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2005 SPIE vol 5759

[YAN 2006] E. Yang, M. Frecker, E. Mockenstrum
"Finite element and experimental analyses of non-axisymmetric dielectric elastomer actuators"
Pennsylvania State University, USA
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2006 SPIE vol 6168

[YU 2004] Z. Yu, C. Ang, L. E. Cross; A. Petchsuk, T.C. Chung
"Dielectric and electroactive strain properties of poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene-chlorotrifluoroethylene) terpolymers"
University of Akron-Ohio and Pennylvania State University, USA
Applied Physics Letters, vol. 84, n. 10, 2004

[ZHA 2004] X.Q. Zhang, M. Wissler, B. Jaehne, R. Broennimann, G. Kovacs
"Effects of crosslinking, prestrain and dielectric filler on the electromechanical response of a new silicone and comparison with acrylic elastomer"
Swiss Federal Laboratories for Materials testing and research, Switzerland
Conference on Electroactive polymer actuators and devices, 2004 SPIE vol 5385

[ZHAN 1998] Q. M. Zhang, V. Bharti, X. Zhao
"Giant electrostriction and relaxor ferroelectric behavior in electron-irradiated poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) copolymer
Materials Research Institute- Pennsylvania State University, USA
Science vol. 280, 1998

[ZHAO 1998] X.-Z. Zhao, V. Bharti, Q. M. Zhang
"Electromechanical properties of electrostrictive poly(vinylidene fluoride-trifluoroethylene) copolymer"
Materials Research Institute- Pennsylvania State University, USA
Applied Physics Letters, vol.73, n.14, 1998

ANNEXE 1 : Modèle variationnel pour membrane en IPMC

A1.1 Mise en place du modèle

En petite déformation, pour un matériau linéaire, le principe variationnel est explicité dans le domaine fréquentiel. Cette approche permet d'exprimer les variables de sorties en fonction de celles d'entrées.

En mode générateur, pour un polymère ionique type IPMC, la tension de sortie est exprimée en fonction des forces mécaniques d'entrée. Sachant qu'aux faibles fréquences, les IPMC peuvent être considérés comme une capacité variable, l'énergie électrique est alors estimable **[BUE 2006]**.

Le matériau est en petite déformation et les équations intrinsèques sont prises linéaires, comme pour un matériau piézoélectrique (première hypothèse) (équation A1)

$$\begin{cases} \underline{T} = c_D \underline{S} - h\underline{D} \\ \underline{E} = -h^T \underline{S} + \varepsilon_T^{-1} \underline{D} \end{cases} \quad \text{(A1)}$$

avec

$\underline{T}$ vecteur des contraintes, $\underline{S}$ vecteur des déformées

$\underline{D}$ vecteur déplacement électrique, $\underline{E}$ vecteur champ électrique

c_D matrice de rigidité aussi notée c

h matrice de couplage électromécanique (matrice définie par $h = c_D d\varepsilon_T^{-1}$)

ε_T matrice de permittivité diélectrique déterminée sous contrainte constante (matrice 3*3 symétrique) aussi notée ε

d matrice des coefficients de déformée

On part du principe variationnel écrit entre deux instant t_1 et t_2 (équation A2) dont on explicite les termes (tableau A1.1).

$$\int_{t1}^{t2} (\delta T - \delta V + \delta W_{ext}) dt = 0 \quad \text{(A2)}$$

avec δT variation de l'énergie cinétique, δV variation de l'énergie potentielle, δW_{ext} variation du travail extérieur

Energie cinétique T	Energie potentielle V	Travail extérieur W
$T = \int_{V_{ol}} \frac{1}{2} \rho \underline{\dot{U}}^T \underline{\dot{U}} dV_{ol}$	$V = \int_{V_{ol}} \frac{1}{2} \underline{S}^T c^D \underline{S} - \underline{S}^T h \underline{D} + \frac{1}{2} \underline{D}^T \varepsilon_T^{-1} \underline{D} dV_{ol}$	$W_{ext} = \int_{V_{ol}} \underline{f}\underline{U}^T + V \underline{q}^T d V_{ol}$
ρ masse volumique en kg.m-3 U vecteur déplacement en m	S vecteur des déformées D vecteur déplacement électrique c matrice de rigidité h matrice de couplage électromécanique ε matrice de permittivité diélectrique	U vecteur déplacement en m f vecteur force en N V vecteur tension électrique en V q vecteur charge électrique C

Tableau A1.1 : Energie mise en jeu dans le principe variationnel

Les trois énergies composant le principe variationnel sont déterminées. Pour simplifier les calculs, les variables spatiales et temporelles sont séparées dans les expressions du déplacement mécanique $\underline{U}$ et du déplacement électrique $\underline{D}$.

$$\begin{aligned} U(\underline{X},t) &= \underline{\phi_u^T}(\underline{X})\underline{A}(t) \\ D(\underline{X},t) &= \underline{\phi_D^T}(\underline{X})\underline{q}(t) \end{aligned} \tag{A3}$$

avec

$\underline{\phi_u^T}(\underline{X})$ fonction spatiale du déplacement mécanique

$\underline{A}(t)$ fonction temporelle du déplacement mécanique

$\underline{\phi_D^T}(\underline{X})$ fonction spatiale du déplacement électrique

$\underline{q}(t)$ fonction temporelle du déplacement électrique

De plus, la déformée mécanique *S* est reliée au déplacement *U* par la relation A4.

$$\underline{S} = L_u \underline{U} \tag{A4}$$

avec

L_u opérateur différentiel.

A partir de toutes ces hypothèses et des expressions des énergies mises en jeu, le principe variationnel est alors donné par les équations A5 et A6.

$$\int_{t_1}^{t_2} \delta \underline{A}^T(-M_s \underline{\ddot{A}} - K_s \underline{A} - \underline{\underline{\psi}}\,\underline{q} + \underline{\phi_u}\,\underline{\underline{f}}^T) + \delta \underline{q}^T(-\underline{\underline{\psi}}^T \underline{A} - C^{-1}\underline{q} + \underline{V}^T)dt = 0 \tag{A5}$$

avec

$$\begin{aligned} M_s &= \int_{Vol} \rho \phi_u \phi_u^T dVol \\ \underline{\underline{\psi}} &= -\int_{Vol} (L_u \underline{\phi_u})^T h \underline{\phi_D^T} dVol \\ K_s &= \int_{Vol} (L_u \underline{\phi_u^T})^T c L_u \underline{\phi_u^T} dVol \\ \Gamma^{-1} &= \int_{Vol} \underline{\phi_D} \varepsilon^{-1} \underline{\phi_D^T} dVol \end{aligned} \tag{A6}$$

Pour des variations arbitraires, l'égalité A5 est vérifiée si les deux termes entre parenthèses sont nuls. De plus, on stipule que les coefficients du matériau ont une dépendance fréquentielle et que les entrées mécaniques et les sorties électriques sont harmoniques. Le principe variationnel est ainsi traduit dans le domaine fréquentiel (équation A7).

$$\begin{bmatrix} -M_s w^2 + K_s & \psi(jw) \\ \psi^T(jw) & \Gamma^{-1}(jw) \end{bmatrix} \begin{Bmatrix} \underline{A}(jw) \\ \underline{q}(jw) \end{Bmatrix} = \begin{Bmatrix} \underline{\phi_u}\,\underline{f}^T(jw) \\ \underline{V}^T(jw) \end{Bmatrix} \tag{A7}$$

avec

$$
\begin{aligned}
M_s &= \int_{Vol} \rho \phi_u \phi_u^T \, dVol \\
\underline{\psi}(jw) &= -\int_{Vol} (L_u \underline{\phi_u})^T \, h(jw) \underline{\phi_D^T} \, dVol \\
K_s(jw) &= \int_{Vol} (L_u \underline{\phi_u^T})^T \, c(jw) L_u \underline{\phi_u^T} \, dVol \\
\Gamma^{-1}(jw) &= \int_{Vol} \underline{\phi_D} \varepsilon^{-1}(jw) \underline{\phi_D^T} \, dVol
\end{aligned}
\tag{A8}
$$

<u>Conclusion :</u> Avec ce modèle matriciel, la tension *V* et les charges *Q* en sortie peuvent être déterminés en fonction des sollicitations mécaniques d'entrée, à condition que l'on puisse exprimer les solutions spatiales des déplacements électriques et mécaniques.

A1.2 Application du modèle à une membrane en IPMC

On modélise un IPMC de forme rectangulaire de largeur *a*, de longueur *b* et d'épaisseur *c*. Il est fixe selon sa largeur, et en mode de couplage type 3-3 (déformation mécanique et grandeurs électriques selon l'axe z). La fonction spatiale du déplacement électrique ϕ_D a une expression simple (équation A9).

$$
\phi_D = \frac{1}{ab} \tag{A9}
$$

En ce qui concerne la solution spatiale $\Phi_u(x, y)$ du déplacement mécanique des hypothèses simplificatrices sont nécessaires pour obtenir une expression analytique simple à manipuler. On suppose que notre plaque se comporte comme une membrane en flexion et, on impose comme conditions aux bords libres une fonction sinusoïdale.

Remarque : En toute rigueur, sur ses bords libres, la membrane va plutôt adopter une allure type chaînette que sinusoïdale.

Ainsi, la solution spatiale adopte l' expression analytique A10.

$$
\begin{aligned}
\phi_u &= \sum_m \sum_n O_{mn} \sin(\frac{n\pi y}{b}) \cos(\frac{m\pi x}{a}) \\
O_{mn} &= \frac{2}{b} \int_0^b f(y) \sin(\frac{n\pi y}{b}) dy
\end{aligned}
\tag{A10}
$$

Les premiers modes non nuls de la solution spatiale sont regroupés au sein d'un vecteur solution spatiale Φ_u (équation A11).

$$
\phi_u = \begin{vmatrix}
\sin(\frac{\pi y}{b}) \\
\sin(\frac{\pi y}{b}) \cos(\frac{\pi x}{a}) \\
\sin(\frac{\pi y}{b}) \cos(\frac{2\pi x}{a}) \\
\sin(\frac{\pi y}{b}) \cos(\frac{3\pi x}{a})
\end{vmatrix}
\tag{A11}
$$

Le modèle des plaques de Kirchhoff permet de réduire le problème mécanique à trois inconnues. Le calcul des termes M_s, K_s, Γ est alors beaucoup plus simple.

En ce qui concerne le terme de couplage ψ, la contribution du à la flexion est plus importante que celle due au cisaillement. Si bien que le terme de couplage associé à notre application est donné par l'équation A12.

$$\psi = \int_{vol} \frac{\upsilon Y}{1-\upsilon} d\varepsilon_{33} (z \frac{\partial^2 \phi_u}{\partial x^2} + z \frac{\partial^2 \phi_u}{\partial y^2}) dvol \tag{A12}$$

avec

υ coefficient de Poisson du matériau

<u>Conclusion :</u> Pour une plaque en IPMC, tous les termes du modèle variationnel sont calculables.

A1.3 Calcul théorique de l'énergie récupérable

A partir du modèle matriciel des couplages électromécaniques au sein du polymère ionique, l'expression des inconnues *A* et *Q* est obtenue par inversion matricielle (équation A13).

$$\begin{Bmatrix} \underline{A}(jw) \\ \underline{q}(jw) \end{Bmatrix} = \begin{bmatrix} -M_s w^2 + K_s & \psi(jw) \\ \psi^T(jw) & \Gamma^{-1}(jw) \end{bmatrix}^{-1} \begin{Bmatrix} \underline{\phi_u} \, \underline{f}^T(jw) \\ \underline{V}^T(jw) \end{Bmatrix} \tag{A13}$$

Toutefois, le système A16 donne 5 équations comportant 6 inconnues, une sixième équation est nécessaire (équation A14).

$$q(jw) = CV(jw) \tag{A14}$$

avec

C capacité du polymère ionique

Cette relation est vérifiée car le système est utilisé aux faibles fréquences de fonctionnement du polymère. Et, d'après les relevés expérimentaux de Nemat-Nasser, le polymère ionique est plutôt de type capacitif aux faibles fréquences (environ 100µF).

Avec des grandeurs mécaniques et électriques sinusoïdales et après développement et simplification des équations A13, le module de la tension aux bornes de l'IPMC est exprimée en fonction du module de la force d'entrée

<u>Conclusion :</u> Aux bornes de la capacité formée par le polymère ionique, l'énergie électrique maximale récupérable est calculable, avec une valeur de capacité de 100µF et la tension calculée à partir du principe variationnel. Cette démarche est adaptable à toute forme de structure en IPMC puisqu'il suffit de changer l'expression de la solution spatiale choisie.

A1.4 Expériences

Les polymères IPMC utilisés ont une longueur de 3cm, une largeur de 1cm et une épaisseur de 300µm et sont fournis par la société « Artificial Muscle ». Ces échantillons, fixes selon sa largeur, sont soumis à une force extérieure, perpendiculaire à son épaisseur et appliquée en son centre. Cette force sinusoïdale, d'amplitude et de fréquence variables est générée par le biais d'un pot vibrant muni d'une tige applicative. Le pot vibrant est couplé à un amplificateur de puissance, lui même piloté par un générateur de fonction (voir figure A1.1).

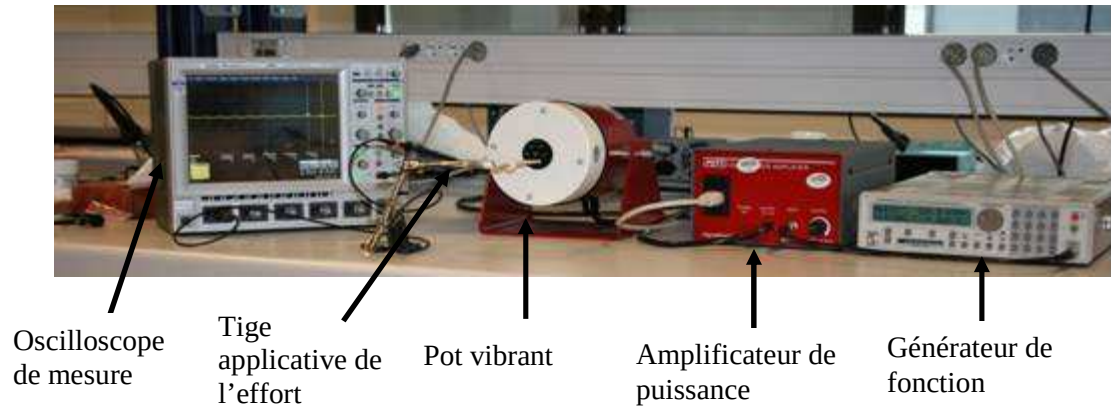


Figure A1.1 : Dispositif de mesure des polymères IPMC en mode générateur

Les courbes de tension obtenues pour quatre échantillons IPMC en fonction de la déflection observée au centre, pour une fréquence de 10Hz, sont représentées sur la figure A1.2.

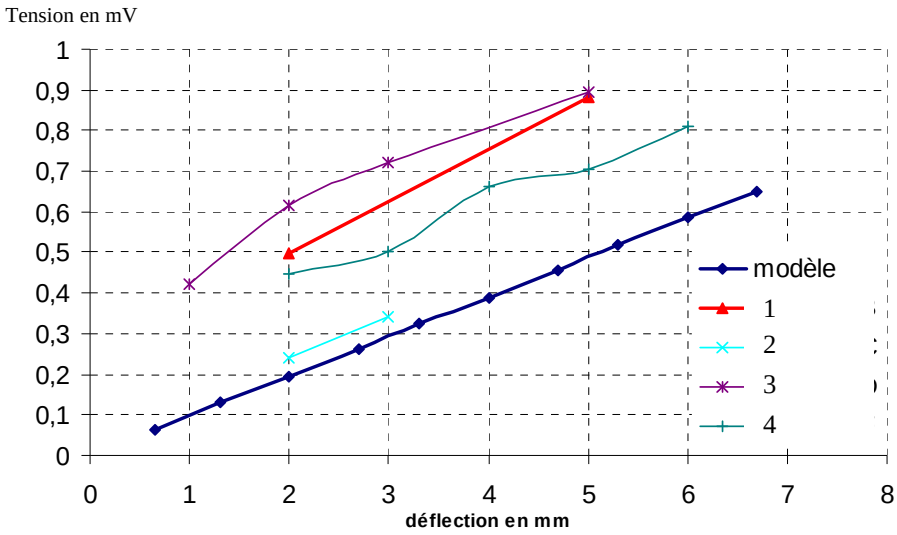


Figure A1.2 : Tensions de sortie en fonction de la déflection en entrée pour une fréquence de 10Hz

<u>Remarque :</u> Expérimentalement, nous relevons les valeurs de déflection au centre de la membrane, car cette mesure est plus pratique. Comme le polymère IPMC est mécaniquement linéaire en petite déformation, nous avons une relation directe entre déformée et force via le module de Young du matériau. Le modèle analytique a donc été adapté pour une entrée mécanique de type déformation facilitant ainsi les comparaisons théorie/expérience.

En bleu foncé sur la figure A1.2 sont tracées les valeurs issues du modèle, avec une relation linéaire entre tension de sortie et déflection en entrée. Les courbes expérimentales respectent sensiblement cette relation avec toutefois des valeurs de tension de sortie très au dessus de celles prédites par le modèle.

Des tests pour d'autres fréquences ont aussi été réalisé. Pour une même amplitude, si on augmente la fréquence, la tension de sortie augmente aussi. Toutefois, en augmentant la fréquence, l'amplitude des mouvements ne peut être aussi important que sous faibles fréquences.

<u>Conclusion :</u> La tension de sortie est fonction de l'amplitude du mouvement et de la fréquence de ce dernier. Une amplitude élevée ou une fréquence élevée permet d'augmenter la tension de sortie mais on ne peut combiner les deux.

A1.5 Conclusion

Cette annexe est consacrée à la modélisation des polymères IPMC par le principe variationnel.

La méthode est très intéressante et peut s'adapter à toutes structures, du moment que l'on peut déterminer ou approximer la fonction spatiale modélisant les déformations de la structure.

Le modèle mis en place s'appuie sur trois hypothèses fortes :

- des petits déplacements
- des équations intrinsèques linéaires
- une fonction spatiale mécanique de type sinusoïdale

Il est clair que des équations intrinsèques linéaires découlant de l'hypothèse des petites déformations est une approximation importante du comportement du polymère.
De plus, la fonction spatiale mécanique observée lors des expériences n'est ni une sinusoïde, ni une chaînette. Par contre, une sinusoïde « enveloppe » de façon large cette fonction spatiale.
Ainsi, les prédictions de ce modèle sont plus des « ordres de grandeurs » et des « tendances d'évolution » :

- millivolt et milliampère
- décroissance des valeurs électriques de sortie lorsque l'on augmente la fréquence d'utilisation

A 10Hz, la puissance électrique générée par ce dispositif varie théoriquement de 42µW jusqu'à 4.2mW en fonction de l'amplitude du mouvement mécanique, valeurs en accord avec l'état de l'art [SHA 2004-b].

Toutefois, expérimentalement, l'énergie électrique maximale récupérée est de 50pJ ce qui est très faible en comparaison aux autres polymères électroactifs. Pour obtenir de meilleure valeur, il faut augmenter l'amplitude du mouvement et la fréquence d'utilisation.

ANNEXE 2 : Protocole de mesure par vidéo-extensomètre

Les essais mécaniques en traction sont réalisés par une méthode sans contact avec un vidéo extensomètre au laboratoire SYMME de l'Université de Savoie.

La figure A2.1 précise le dispositif expérimental que l'université de Savoie a mis à notre disposition.

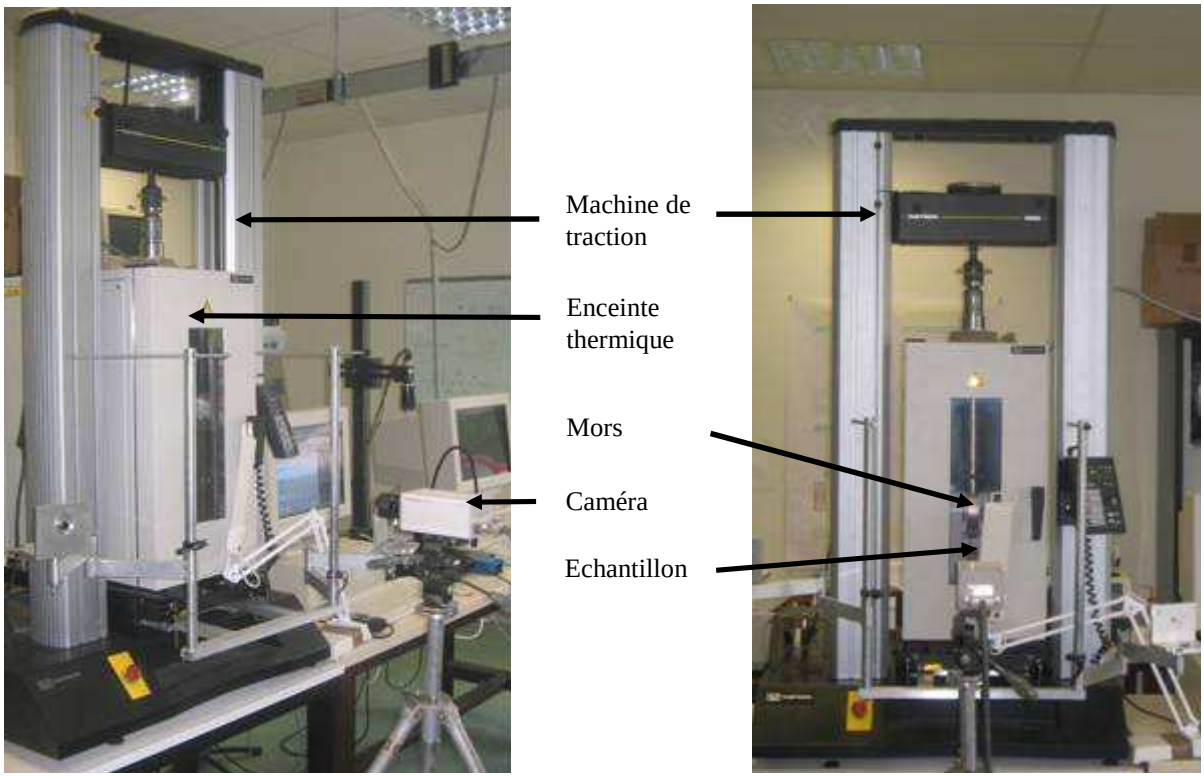


Figure A2.1 : Dispositif expérimental

La machine de traction utilisée est une Instrom 5569 double colonne et l'enceinte thermique une Instrom 2408 pouvant atteindre au maximum 250°C.

Les caractérisations sont dans un premier temps réalisées à température ambiante (20-25°C). L'enceinte thermique non utilisée est reculée pour obtenir une course plus importante des mors, nous permettant ainsi de solliciter l'échantillon en très grandes déformations (jusqu'à 1000%).

L'échantillon à caractériser a une forme rectangulaire de longueur 5 ou 10 fois supérieure à la largeur afin d'être dans les conditions d'un essai en traction uniaxiale. Cet échantillon est pris entre les mors de la machine de traction. Pour minimiser le glissement entre l'échantillon et les mors, une pièce en plastique est rajoutée entre l'échantillon et le mors de la machine de traction.

Un mouchetis (fond uni avec des tâches d'une autre couleur par-dessus) est réalisé sur l'échantillon à caractériser grâce à une solution visqueuse (Mécaprex) et à de l'encre colorée (feutre souffleur Blopens). Ce mouchetis est nécessaire pour suivre au cours du temps les déformées subies par le polymère (figure A2.2) et doit pouvoir subir de larges déformations. En d'autres termes les « tâches » ne doivent pas se craqueler sinon le post traitement ne sera pas efficace.

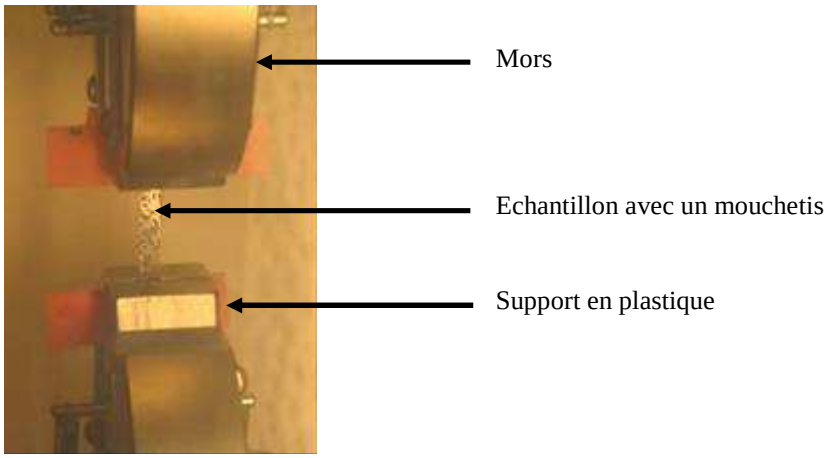


Figure A2.2 : Mouchetis réalisé sur le polymère 3M VHB 4910

Une caméra noir et blanc (Hamamatsu) de résolution 1280*1024 filme les déformées subies par le polymère à raison de 9 images par seconde en fréquence d'acquisition maximale. Au maximum 200 images peuvent être stockées par séquence soit par essai mécanique.

Puis, sur la séquence qui nous intéresse un post-traitement est opéré grâce au logiciel 7D développé par Pierre Vacher de l'Université de Savoie.

Protocole d'extraction des données des essais par vidéo-extensomètre

L'extraction des données ou post-traitement est réalisée sous le logiciel 7D par corrélations de pixels entre deux photos de l'échantillon à caractériser. Ces photos, prises à des instants différents au cours de la déformation de l'échantillon, permettent de retracer fidèlement le film des déformations subies par l'échantillon. L'interface graphique de ce logiciel de post traitement est représentée sur la figure A2.3.

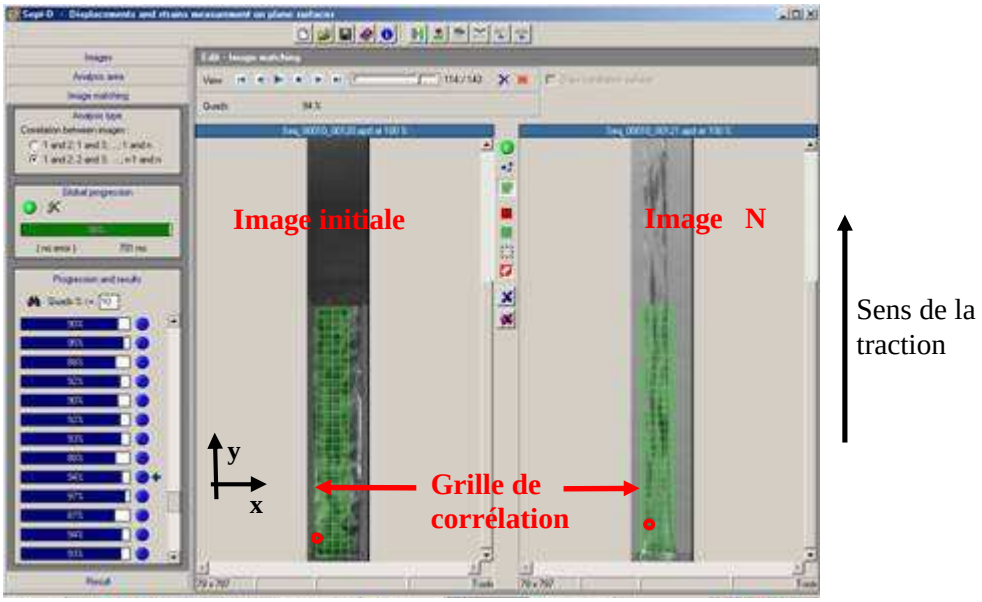


Figure A2.3 : Exemple de corrélation par la première méthode

Sur chaque photo, une grille de corrélation (zone verte sur la figure 2.7) est définie : elle délimite la zone pour le post traitement et la taille des pixels utilisés. Les déformations subies par les tâches réalisées sur l'échantillon sont suivies au travers de cette grille de corrélation. Par exemple, la tâche

entourée rattachée initialement au pixel 1,3 se trouve associée au pixel 2,5 à l'image N. La direction, le sens et la valeur de ce déplacement sont calculables, et les valeurs numériques des déformations sont rattachées à chaque angle du pixel initial 1,3.

Le logiciel peut effectuer des correspondances entre les pixels d'une image N par rapport au même pixel de l'image initiale (figure A2.3) ou entre les pixels d'une image N par rapport aux pixels d'une image N-1.

La figure A2.4 relate les déformées locales relatives au sein de l'échantillon entre le pas N et le pas N-1. Les résultats peuvent être visionnés en 2D ou en 3D.

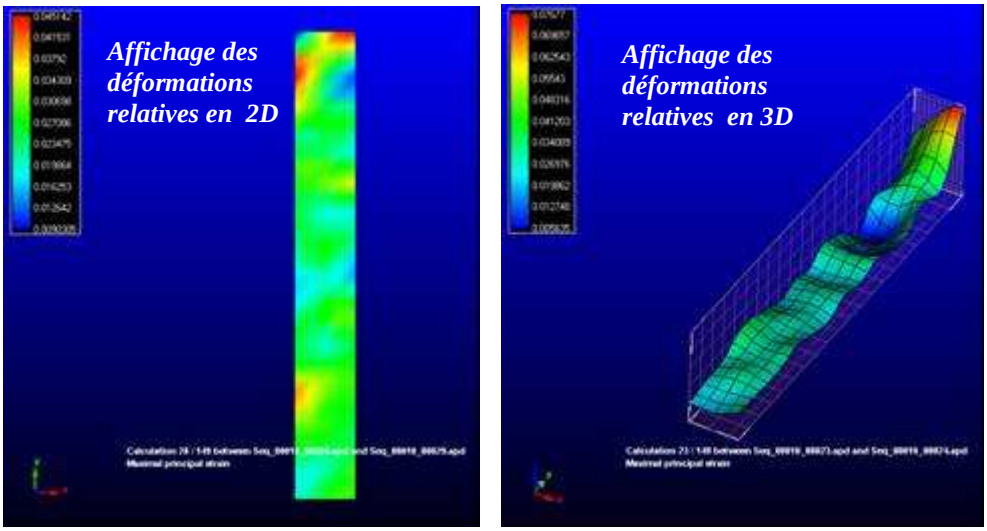


Figure A2.4 : Exemple de déformation relative entre le pas N et le pas N-1

La déformation relative est assez homogène au sein du polymère. Seule la partie haute de l'échantillon subie des déformations plus importantes ce qui n'est autre que l'effet des mors sur l'échantillon.

Pour obtenir la meilleure reproductibilité et fiabilité du post traitement, la grille de corrélation sera une colonne verticale sur toute la hauteur de la photo. En effet, comme l'échantillon est sollicité en grande déformation, plus la grille est grande et plus longtemps il est possible de suivre un point ce qui permet d'être en très grandes déformations. La taille des pixels devra être raisonnable. En effet, nous avons noté une divergence si la taille des pixels est trop petite, le logiciel corrèle très difficilement. Enfin, les données seront extraites à partir d'un point central afin de s'affranchir des possibles effets de glissement entre le polymère et les mors de la machine de traction.

En ce qui concerne la contrainte subie par le polymère, la force selon l'axe de la traction est mesurée par un capteur de force de 1000N, capteur 2525-806 dont la sensibilité est excellente (0.05% erreur sur la mesure faite). Cette mesure de force est enregistrée via le logiciel de pilotage et d'acquisition spécifique à la machine de traction utilisée (Instrom). On choisit ainsi le nombre de mesures par minute pour être en adéquation avec le nombre de photos prises et donc le nombre de déformées relatives calculées.

La dernière étape est la mise en correspondance des données de déformations relatives et des données de forces pour obtenir les courbes expérimentales traduisant la loi de comportement du polymère.

Afin d'obtenir une reproductibilité de nos mesures, plusieurs échantillons sont testés dans une même configuration.

Remarque 1 : L'ajout d'un mouchetis ou d'une épaisseur de graisse conductrice (Circuit Work 7100) ne perturbe pas le comportement du polymère seul. En effet, par une mesure de déformée transverse (déplacement relatif des mors de la machine de traction), les lois de comportement mécanique pour le polymère seul ou avec un mouchetis ou une électrode en graisse sont sensiblement identiques.

Remarque 2 : D'après la norme sur les essais en traction, il existe un rapport longueur/largeur minimal à respecter pour être sur de se trouver en traction uniaxiale. Avec notre échantillon, ce rapport minimal est de 13. Mais avec un tel rapport et une course des mors limitée, les déformations subies par l'échantillon seront très limitées. Or, pour un rapport de 5, les vecteurs déplacements obtenus via le logiciel 7D, sont parallèles à la direction de la déformation imposée. Ainsi, pour un rapport moindre que le rapport préconisé par la norme, l'échantillon est toujours en traction uniaxiale.

Remarque 3: Pour des vitesses de sollicitation de plus en plus faibles, la courbe de loi de comportement ne peut être tracée sur la même plage car cette dernière dépend du nombre d'images prises par seconde. Il faudrait pouvoir enregistrer plus d'images au total pour obtenir une plage plus large ou enregistrer moins d'images par seconde, mais dans ce cas le logiciel effectue difficilement les corrélations.

ANNEXE 3 : Protocole de mesure spectrométrie diélectrique

Une spectrométrie diélectrique permet d'identifier les constantes électriques propres au polymère. De plus, grâce au dispositif mis en place, l'influence de plusieurs paramètres tels la température, sur ces constantes peut être déterminé. Ces mesures de spectrométrie ont été réalisées au laboratoire G2ELAB.

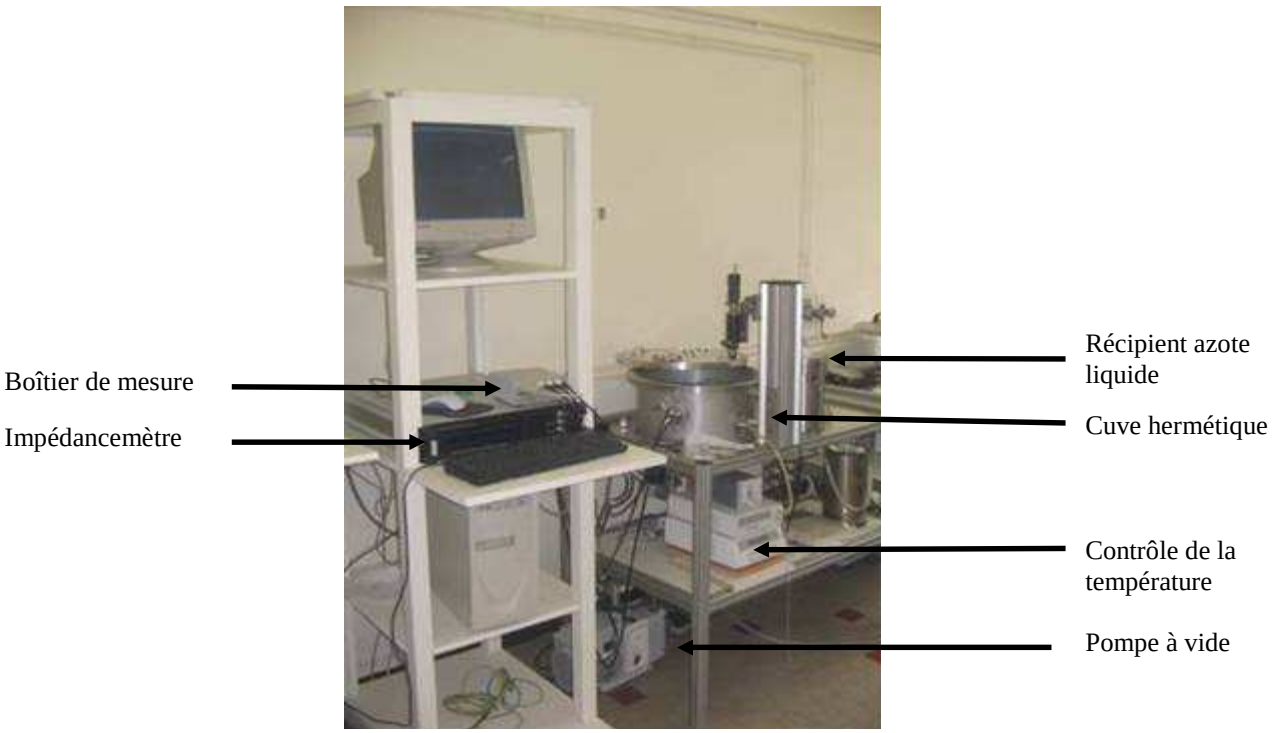


Figure A3.1 : Dispositif expérimental pour une spectrométrie diélectrique

L'échantillon est placé sur une plaque au sein d'une cuve protectrice hermétique. Sous cette plaque, un circuit hydraulique permet la circulation d'azote liquide nécessaire au refroidissement de l'échantillon. En combinaison, une résistance électrique est placée sous cette plaque et permet de chauffer le matériau. La température au sein de la plaque est maintenue constante grâce à un boitier de contrôle Linkam TMS 94. L'enceinte étant hermétique, les mesures peuvent être réalisées sous différences ambiances : à l'air, sous vide, sous atmosphère d'azote gazeux.
Sur l'échantillon à caractériser, deux pointes de mesures sont posées (figure A3.2).

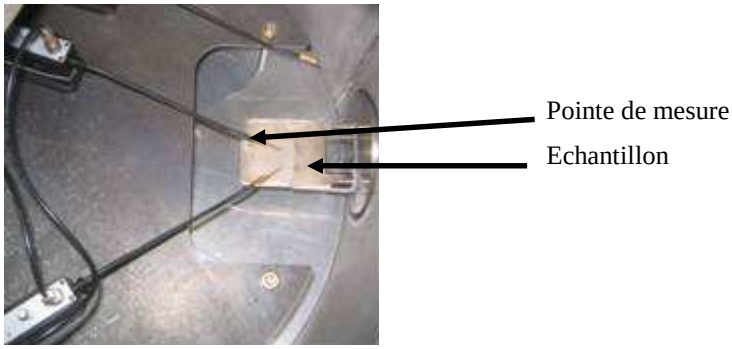


Figure A3.2 : Pointes de mesure

Ces pointes sont reliées à un boitier de mesure. Par une pointe, une tension est injectée au polymère (≤3V), et par l'autre pointe le courant est mesuré. Le boitier de mesure traduit ces informations en terme d'impédance (capacité et résistance mesurées) et le logiciel « Windeta » (associé au spectromètre Novocontrol) traduit ces données expérimentales en constantes propres du matériau en fonction des données géométriques de l'échantillon préalablement entrées dans le logiciel.

Pour chaque échantillon, l'impédance est mesurée sur une plage de fréquence de 10^{-2} à 10^{5}Hz et sur une plage de température de -40°C à 100°C révélée par les essais mécaniques.

Il existe deux tests possibles. Pour une température donnée et fixe, on fait varier la fréquence des signaux envoyés à l'échantillon : on obtient les paramètres électriques pour une température donnée en fonction de la fréquence. Ou l'inverse, pour une fréquence donnée, la température de l'échantillon varie : on obtient les paramètres électriques pour une fréquence donnée en fonction de la température. Ces deux tests sont normalement rigoureusement semblables sauf si le polymère est viscoélastique c'est-à-dire que le comportement futur varie en fonction du comportement passé.

ANNEXE 4 : Choix de la configuration de test pour l'électrode graisse

L'influence de cette électrode sur les propriétés électriques du polymère doit être testée.
Toutefois, une structure avec des électrodes en graisse ne peut être posée tel quel dans l'enceinte de mesure, car de la graisse conductrice risque de se déposer partout, voir de fondre ou de couler avec la température. Cette structure est donc posée sur une plaque conductrice ou un scotch conducteur.

Différentes configurations (configuration 1 à 3 sur la figure A4.1) sont testées afin de déterminer la structure adéquate pour ces nouvelles mesures. Les échantillons représentés schématiquement au sein de la figure A4.1 sont composés du polymère 3M VHB 4910 (en blanc), de la graisse conductrice d'argent (en rouge) et du scotch conducteur en cuivre (en vert).

Configuration 1 Configuration 2 Configuration 3

Figure A4.1 : Différentes configurations de tests

La capacité et la permittivité relative pour ces trois configurations sont tracées sur la figure A4.2.

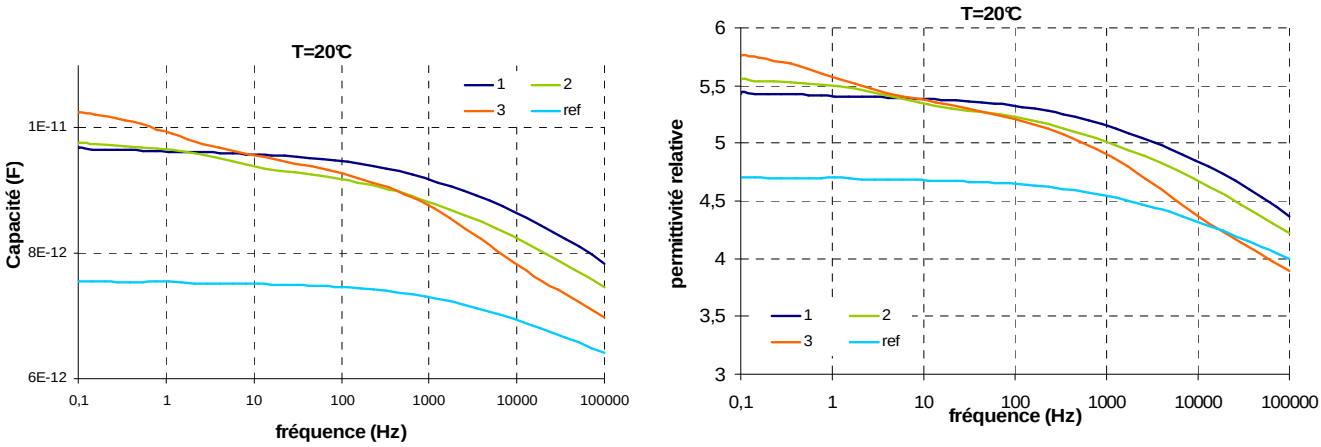


Figure A4.2: Capacité et constante diélectrique pour les configurations 1, 2, 3 et pour réf. (électrode en or)

Entre la configuration 2 et 3, un scotch conducteur en cuivre a été rajouté. La courbe mesurée pour la configuration 3 se décale d'une décade vers les faibles fréquences par rapport à la courbe de la configuration 2. La permittivité relative en basse fréquence (0,1Hz) augmente de 7,4% par rapport à la valeur mesurée dans la configuration 2. Ce phénomène (décalage+augmentation en basse fréquence) est du à une capacité parasite formée entre les deux épaisseurs d'électrodes déposées du même côté.

Le même effet de capacité parasite explique les différences observées entre la configuration 1 et 2. De plus, l'allure des courbes entre la configuration 1 et celle de référence (notée ref sur la figure 2.20) est similaire, seules les valeurs de permittivité changent.

<u>Conclusion :</u> La configuration 1 est choisie pour effectuer les essais sur l'influence de la nature de l'électrode.

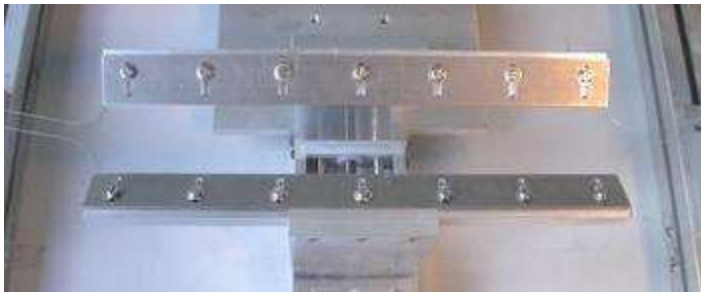
ANNEXE 5 : Réalisation des générateurs diélectriques

Cette annexe présente les différentes étapes nécessaires pour la réalisation d'un générateur diélectrique. La forme du support flexible (étape 4) est prise volontairement simple. Rien n'empêche d'envisager des formes plus complexes pour ce support autorisant ainsi certains degrés de liberté.

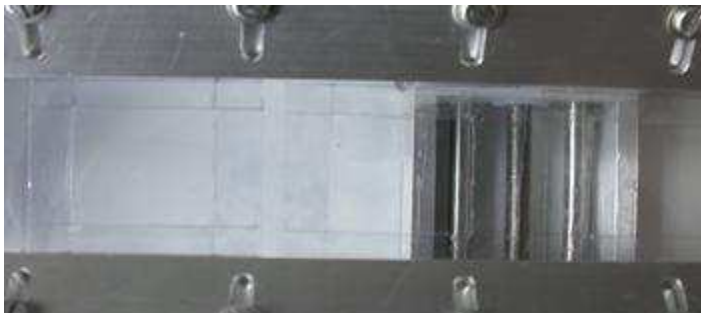
Etape 1 : On étire le polymère selon sa longueur sur le banc afin d'obtenir le coefficient de pré-déformation λ_p souhaité

Etape 2 : Les bords du polymères selon cette longueur étirée, sont pincés sur une largeur bien précise, via un système de plaque et de vis.

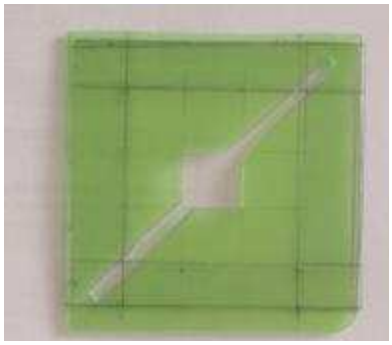
Etape 3 : Le polymère est étiré selon son second axe. Les deux supports initialement rapprochés s'écartent grâce à une vis sans fin.



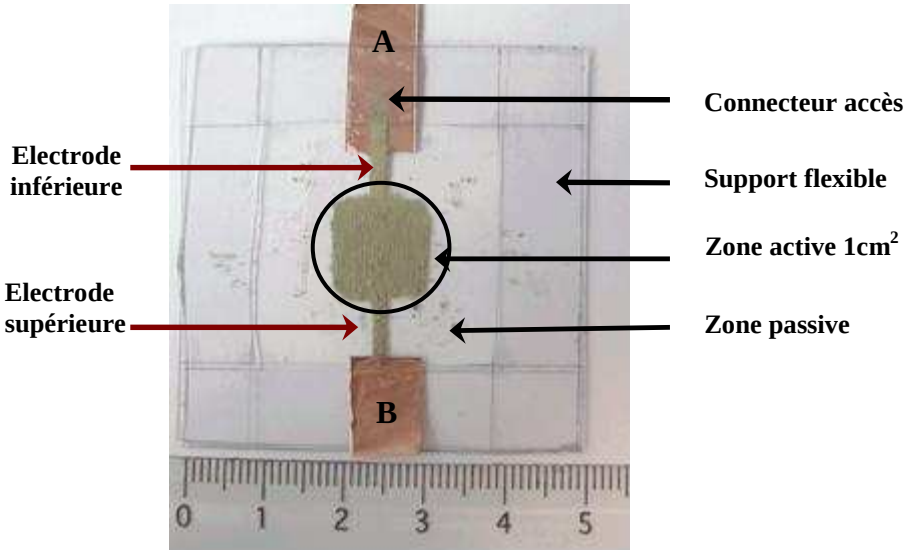
Etape 4 : Après relaxation du matériau, le polymère est pris en sandwich entre deux supports flexibles, pour pouvoir maintenir la pré-déformation et sortir la membrane de ce support rigide.



Etape 5 : Un cache en plastique est utilisé pour délimiter la zone active. Les électrodes y sont déposées par sérigraphie manuelle.



Résultat obtenu :



ANNEXE 6 : Marche et course humaine

A6.1 Définition de la biomécanique

L'approche biomécanique pour l'étude de la marche et de la course humaine s'est imposée dès la fin du XIXème siècle, dans le sillage des travaux de E.J. Marey (1830-1904). Au-delà de la simple observation, ce scientifique développa toute une palette de moyens expérimentaux pour réaliser une étude physiologique sur les mécanismes du mouvement. Toutes les figures et tableaux sont extraits du livre de Viel **[VIEL 1999]**.

La biomécanique est une science interdisciplinaire qui combine la pensée mécanique et les approximations qui en découlent, avec l'étude du vivant, la physiologie. La biomécanique se base sur l'analyse cinématique et/ou dynamique de mouvements complexes. Au cours des 30 dernières années, une multitude de données expérimentales ont été acquises, traitées et ont permis de modéliser le mouvement de la marche. Ce type d'étude trouve son utilité dans le domaine du sport ou de la rééducation.

A6.2 La marche humaine

La locomotion, tâche volontaire, peut se définir comme une translation de l'ensemble du corps dans le sens de déplacement. Ce processus est périodique et un cycle peut se décomposer en différentes phases (figure A6.1).

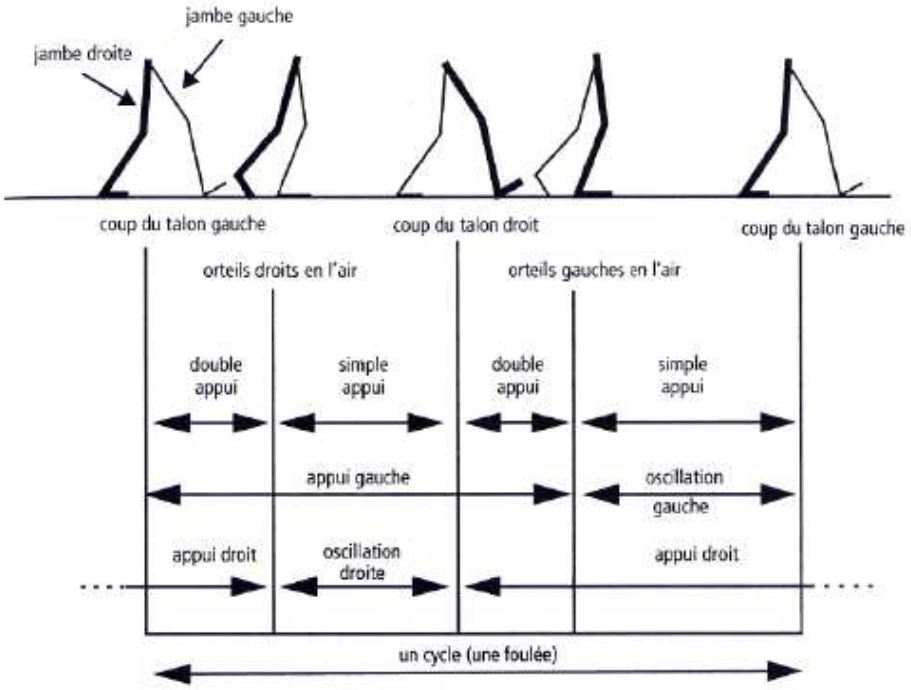


Figure A6.1 : Les divisions du cycle de la marche

Par convention internationale, le cycle standard de marche décrit par le membre inférieur droit est composé :

- d'une phase d'appui qui se divise en trois sous-phase et occupe 60% du cycle total
  - double appui
  - appui unipode
  - double appui
- d'une phase d'oscillation qui occupe 40% du cycle total

Le membre inférieur gauche décrit le même cycle mais décalé de 50% dans le temps. Le double appui constitue un caractère fondamental de la marche des bipèdes, et distingue le processus de marche de celui de la course.

Cette description du cycle de marche est complétée par une série de paramètres caractéristiques :

- la durée du pas simple (« step period ») ne représente en fait que la demi période du mouvement soit la moitié d'une foulée (figure A6.1)
- la longueur du pas (« stride length ») est la distance qui sépare un point donné du même pied entre deux appuis successifs de ce pied
- la cadence est le nombre de pas par minute
- la vitesse moyenne de progression ($m.s^{-1}$) est le produit de la cadence par la longueur du pas

La cadence varie en fonction de l'âge et de l'ossature du sujet. Cependant, pour un cycle de marche les durées des phases d'appui et d'oscillation sont assez stables. Toutefois, si la cadence augmente (marche rapide), la durée de la phase d'appui et de la phase d'oscillation diminuent mais avec une phase d'appui plus courte que la phase d'oscillation. A l'inverse, si le sujet porte du poids, c'est la phase d'oscillation qui est bien plus courte que la phase d'appui.

Le tableau A5.1 récapitule les valeurs standard pour les paramètres énumérés ci-dessus et pour une marche chez des sujets mâles adultes.

	Unité	**Min**	**Moy**	**Max**
Durée du pas simple	**s**	0,5	0,7	1
Longueur du pas	**m**	1,17	1,32	1,42
Cadence	**pas/min**	60	80	120
Vitesse moyenne de progression	**m/s**	1	1,25	2,4

Tableau A6.1 : Valeurs standards des paramètres caractéristiques de la marche

Les valeurs minimales du tableau A6.1 correspondent à une marche à allure lente, et les valeurs maximales du tableau A6.1 à une marche à vive allure à la limite de la course. Il est à noter que pour une femme, un enfant ou une personne âgée les valeurs du tableau 3.1 varient.

Au vu du tableau A6.1, un homme adulte effectue en moyenne 80 pas par minute avec une vitesse de progression de $1,25 m.s^{-1}$.

A ces valeurs quantitatives descriptives de la marche humaine, la biomécanique introduit une étude cinématique. La première caractéristique d'un cycle de marche est donnée par le patron cinématique (figure A6.2).

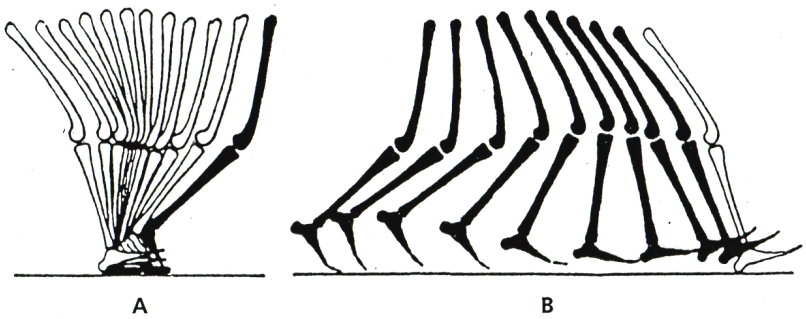


Figure A6.2 : Patron cinématique de la marche

La patron cinématique n'est autre que le suivi du mouvement de chaque membre au cours du temps, riche d'enseignement sur la trajectoire de ces membres.

En effet, le membre inférieur est généralement modélisé par trois chaînons (segment auquel est associé un centre de gravité) : cuisse, mollet, pied. Les degrés de libertés entre chacun de ces chaînons peuvent être déterminés : une rotation au niveau de la hanche, une rotation au niveau de la rotule et une rotation au niveau de la cheville. Le mouvement de la jambe est donc caractérisé par les variations de trois angles, jointure entre les trois chaînons qui composent cette jambe. La figure A6.3 représente les variations d'angle de la « rotule » au cours d'un cycle de marche

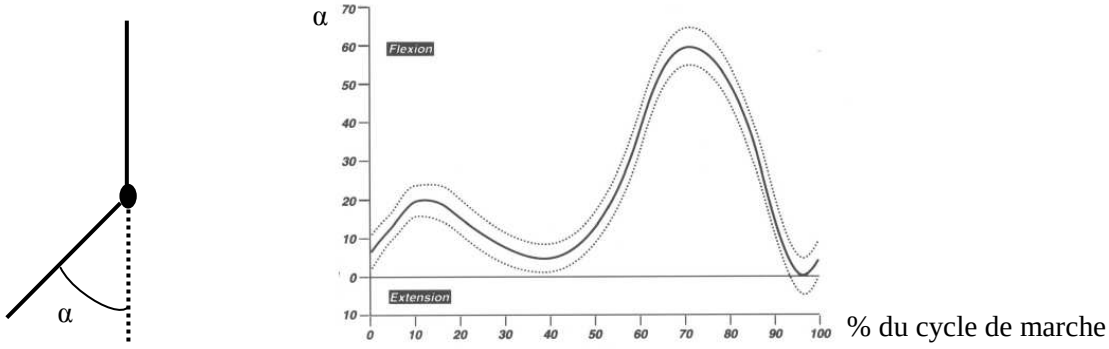


Figure A6.3 : Cinématique articulaire du genou lors de la marche

A partir de la connaissance de ces variations (mesures expérimentales), le mouvement du genou peut être déterminé. Sur la figure A6.3, l'angle au niveau du genou varie entre 5° et 60° au cours d'un cycle. Ces informations sont précieuses pour caractériser cinématiquement un cycle de marche et peuvent être utile pour des applications de rééducation d'un patient ou d'amélioration des performances d'un sportif ou pour le biomimétisme (ex : robot marcheur).

Jusqu'à présent, le cycle de la marche a été étudié dans son ensemble : mouvement de trois chaînons. Mais, il est aussi possible d'étudier l'action de certains muscles au cours du processus de la marche. Cette analyse permet de déterminer l'action globale du système musculaire.

En effet, l'activité électromyographique (muscle excité) permet de déterminer quel muscle joue un rôle dans le processus de locomotion et à quel moment dans le cycle de marche. Toutefois, un muscle peut jouer sur plusieurs degrés de liberté en même temps, accélérer ou freiner le mouvement. Ainsi, le moment musculaire net agissant sur une articulation permet de déterminer si la combinaison des actions des muscles et tendons au niveau d'une articulation freine ou accélère le mouvement. Ce qui permet de déterminer si l'articulation est en extension (moteur) ou en flexion (frein) (figure A6.4).

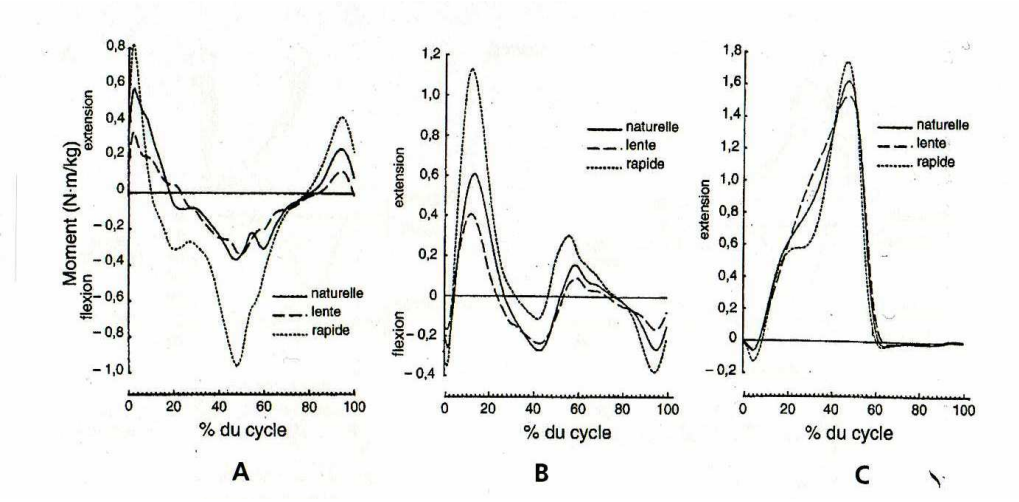


Figure A6.4 : Moment musculaire net lors d'un cycle de marche pour A (hanche) B (genou) C (cheville)

A partir des figures A6.3 et A6.4, on peut déterminer le sens des transferts d'énergie entre les muscles soit si le muscle est moteur ou résistant.

Enfin, le coût énergétique de la marche est déterminé par la consommation d'oxygène du sujet (ΔV_{O2}) qui mesure l'énergie métabolique dépensée par l'organisme au cours de l'exercice (figure A6.5).

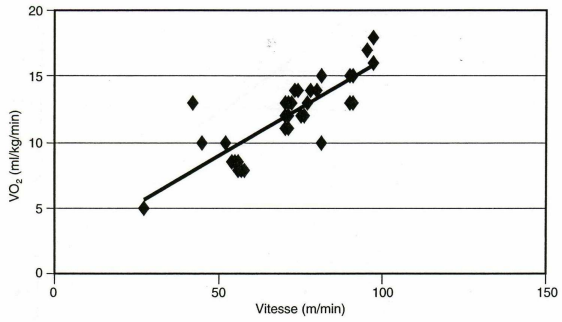


Figure A6.5 : Dépense calorique lors de la marche

Le cout énergétique de la marche augmente avec la vitesse de marche : plus le sujet marche vite et plus il doit fournir de l'énergie pour cette activité.

Ainsi, si nous ajoutons une structure lourde et rigide au niveau du genou du sujet, ce dernier devra fournir un effort supplémentaire pour réaliser un cycle de marche : le coût énergétique augmente. Dans ce cas, la structure n'est plus une structure récupératrice opportuniste puisque de l'énergie est créée en plus pour cette application. Il faut donc que la consommation d'oxygène reste stable pour que notre structure récupère de l'énergie de façon opportuniste.

A6.3 La course

Comme la marche, la course est aussi un processus cyclique pouvant être représenté en phase (figure A6.6).

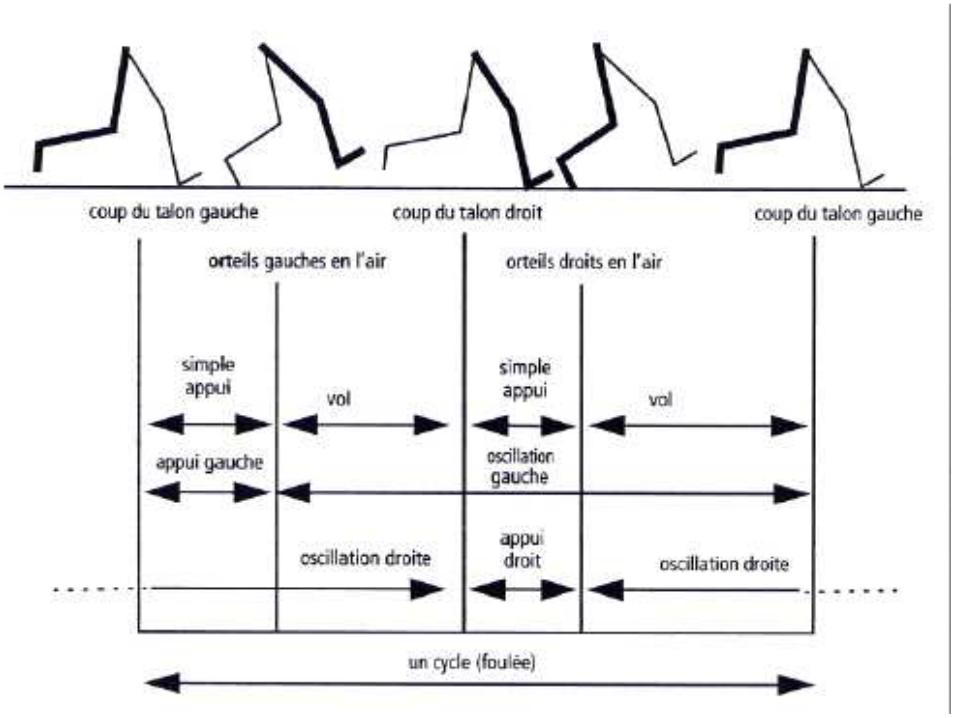


Figure A6.6 : Phase de la course humaine

Contrairement à la marche humaine, il y a pas de phase de double appui mais une phase de suspension durant laquelle aucun des deux pieds du sujet n'est en contact avec le sol. Les mêmes paramètres que pour la marche caractérisent la course. Le tableau A6.2 relate les valeurs standard de ces données pour des sujets mâles adultes.

	Unité	Min	Moy	Max
Durée du pas simple	**s**	0,45	0,5	0,7
Longueur du pas	**m**	1,46	4,6	7,4
Cadence	**pas/min**	90	120	140
Vitesse moyenne de progression	**m/s**	2,2	6,9	11,1

Tableau A6. 2 : Valeurs standard pour la course

Un homme adulte effectue en moyenne 120 pas par minute à une cadence de 6,9m.s^{-1}, lors du processus de course. Les valeurs pour unecourse à allure restreinte s'entrecroisent avec les valeurs pour une marche rapide mais ces deux processus restent distincts.

Comme pour la marche, le cycle cinématique musculaire de la course peut être observé. L'angle α au niveau du genou alors varie entre 5° et 120°.

A6.4 Conclusion

L'étude de la marche et de la course humaine nous a fourni toutes les informations nécessaires à la caractérisation des sources mécaniques potentielles au niveau du genou : variations d'angle au cours d'un cycle et fréquence de ces cycles. Ces informations sont primordiales pour la localisation et le dimensionnement d'une application de récupération d'énergie mécanique au niveau du genou.

Récupération d'énergie mécanique par polymères électroactifs pour microsystèmes autonomes communicants

Le but de ce travail de thèse est d'explorer la potentialité des polymères électroactifs pour une application de récupération d'énergie mécanique ambiante.
Les polymères électroactifs incluent la famille électronique (piézoélectrique, diélectrique…) et la famille ionique (IPMC, ionic gels…). Grâce à un état de l'art complet, six types de polymères ont été sélectionnés, modélisés analytiquement (couplage électromécanique) et caractérisés. De cette première partie comparative ressortent les polymères diélectriques à la forte densité d'énergie récupérable ($1.5J.g^{-1}$).
La seconde partie de ce travail de thèse concerne la mise en place d'un modèle analytique électro-mécano-thermique le plus fiable possible et adaptable à tous types de structures et de sollicitations. Pour ce faire, une large campagne de mesures électriques et mécaniques a été opérée afin de déterminer finement le comportement physique du matériau, les variations des paramètres intrinsèques et les pertes associées. Ce modèle analytique est validé par une série de tests sur des cas simples de structures.
La dernière partie de ce travail de thèse concerne le développement d'une application novatrice : la récupération d'énergie mécanique au niveau du genou lors de la marche humaine. Le convertisseur a été dimensionné grâce au modèle développé, puis testé in situ. Finalement, des pistes pour la gestion électrique autonome de l'application sont proposées.

Mots-clés : Polymères électroactifs, Polymères diélectriques, Récupération d'énergie mécanique, Conversion électromécanique, Caractérisation électrique et mécanique, Vêtements intelligents

Scavenging mechanical energy with electroactive polymers for wireless autonomous devices

Electroactive polymers are studied and compared to create an innovating mechanical scavenging application.
Electroactive polymers include electronic (piezoelectric, dielectric…) and ionic (IPMC, gels…) polymers. Thanks to a complete state of art, six polymers have been chosen, characterised and analytically modelled. This comparative study reveals dielectric polymers which have a very important energy density ($1.5J.g^{-1}$).
Then, a detailed electromechanical analytic modelling for dielectric polymer has been realized. This modelling is based on an electric and mechanical characterization of the polymer, and takes care of the parameters variation. Adaptable to any structure and solicitation, this modelling is validated by first simple measurements.
Finally, an innovating application is developed: scavenging mechanical energy during human motion in the level of knee. A prototype has been designed thanks to the analytical modelling, and tested in situ. Ways to create power management is opened.

Keywords: Electroactive polymers, Dielectric polymers, Mechanical scavenging energy, Electromechanical generator, Electric and mechanical characterization, E-textile

N°ISBN : 978-2-84813-123-8